

**BỘ GIÁO DỤC
VÀ ĐÀO TẠO**

**VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC
VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM**

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ



Nguyễn Trần Hà My

**KHẢO SÁT TÍNH ỔN ĐỊNH CỦA QUY TRÌNH CHẾ TẠO
 $K_2GdF_5:Tb$ BẰNG NGHIÊN CỨU ĐÁP ỨNG NHIỆT PHÁT QUANG
CỦA VẬT LIỆU VỚI BỨC XẠ HẠT NHÂN**

**Chuyên ngành: Vật lý nguyên tử và hạt nhân
Mã số: 8440106**

LUẬN VĂN THẠC SĨ VẬT LÝ

NGƯỜI HƯỚNG DẪN KHOA HỌC

TS. Hà Xuân Vinh

Hà Nội - 2023

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan nội dung nghiên cứu trong luận văn này là công trình nghiên cứu của tôi dưới sự hướng dẫn của TS. Hà Xuân Vinh, TS. Đoàn Phan Thảo Tiên. Các kết quả nghiên cứu trong luận văn do chúng tôi nghiên cứu. Nếu sai tôi hoàn toàn chịu trách nhiệm.

Tác giả luận văn

Nguyễn Trần Hà My

LỜI CẢM ƠN

Trong quá trình thực hiện và hoàn thiện luận văn, tôi xin gửi lời cảm ơn sâu sắc nhất đến TS. Hà Xuân Vinh, TS. Đoàn Phan Thảo Tiên đã hướng dẫn và hỗ trợ.

Tôi xin chân thành cảm ơn sự quan tâm, giúp đỡ, động viên từ quý thầy/cô giảng dạy thuộc khoa Vật lý - Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Nghiên cứu và Ứng dụng Công nghệ Nha Trang - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, thầy/cô tại Viện Nghiên cứu hạt nhân Đà Lạt.

Tôi xin cảm ơn sự hỗ trợ của Đề tài cấp Bộ năm 2022 - 2023 về “Nghiên cứu các đặc trưng nhạy bức xạ photon và neutron đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ ” do PGS.TS. Nguyễn Văn Hùng làm chủ nhiệm.

Ngoài ra, tôi cũng xin gửi lời cảm ơn tới Gia đình, Ban Giám hiệu, đồng nghiệp Trường Trung cấp nghề Vạn Ninh động viên, khuyến khích, tạo điều kiện thuận lợi về tinh thần, vật chất và thời gian trong suốt quá trình tôi tham gia học tập, nghiên cứu và thực hiện luận văn này.

Chân thành cảm ơn!

Hà Nội, tháng 4 năm 2023

Tác giả

Nguyễn Trần Hà My

MỤC LỤC

LỜI CAM ĐOAN

LỜI CẢM ƠN

MỤC LỤC

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT

DANH MỤC CÁC BẢNG

DANH MỤC CÁC HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ

MỞ ĐẦU	7
Chương 1: TỔNG QUAN NGHIÊN CỨU	10
1.1. LÝ THUYẾT NHIỆT PHÁT QUANG	10
1.1.1. Hiện tượng nhiệt phát quang.....	10
1.1.2. Cơ chế nhiệt phát quang	10
1.1.3. Vật liệu nhiệt phát quang	12
1.2. BỨC XẠ HẠT NHÂN VÀ CÁC PHƯƠNG PHÁP GHI ĐO	13
1.2.1. Bức xạ alpha	13
1.2.2. Bức xạ beta	14
1.2.3. Bức xạ gamma	15
1.2.4. Bức xạ X	14
1.2.5. Bức xạ neutron.....	16
1.2.6. Các phương pháp ghi đo bức xạ	17
1.3. TỔNG QUAN CHẾ TẠO VẬT LIỆU THEO PHƯƠNG PHÁP PHA RẮN	17
1.3.1. Cơ sở lý thuyết.....	17
1.3.2. Các yếu tố ảnh hưởng	18
1.4. MỘT SỐ PHƯƠNG PHÁP XÁC ĐỊNH CẤU TRÚC VẬT LIỆU	19
1.4.1. Kỹ thuật nhiễu xạ tia X.....	19
1.4.2. Chụp ảnh SEM.....	21
TIỂU KẾT CHƯƠNG 1	22
Chương 2. ĐỐI TƯỢNG VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU	23
2.1. ĐỐI TƯỢNG NGHIÊN CỨU	23
2.1.1. Các tính chất hóa lý của nguyên liệu	23
2.1.2. Các thiết bị được sử dụng	24
2.1.3. Hệ phát tia X.....	26

2.1.4. Máy đo phổ nhiệt phát quang	27
2.2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU	28
2.2.1. Phương pháp chế tạo vật liệu.....	28
2.2.2. Các kỹ thuật xác định tính chất của sản phẩm.....	34
2.2.3. Nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) với liều bức xạ tia X.....	35
2.2.3.1. Các bước của quá trình chiếu liều bức xạ tia X.....	35
2.2.3.2. Đo phổ nhiệt phát quang.....	38
TIỂU KẾT CHƯƠNG 2	39
Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN	40
3.1. KẾT QUẢ CHẾ TẠO MẪU.....	40
3.2. KẾT QUẢ XÁC ĐỊNH CẤU TRÚC CỦA VẬT LIỆU $K_2GdF_5:Tb$ BẰNG PHƯƠNG PHÁP NHIỄU XẠ TIA X	41
3.3. KẾT QUẢ KHẢO SÁT ĐỘ ĐỒNG ĐỀU MẪU BẰNG CHỤP ẢNH SEM.....	46
3.4. KẾT QUẢ KHẢO SÁT PHỔ NHIỆT PHÁT QUANG.....	48
3.4.1. Kết quả đo phổ nhiệt phát quang	48
3.4.2. Kết quả số điểm (số xung tín hiệu) của các mẻ vật liệu	49
3.5. KẾT QUẢ KHẢO SÁT TÍNH ỔN ĐỊNH CỦA CÁC MẪU VẬT LIỆU CHẾ TẠO.....	51
3.5.1. Kết quả đánh giá độ ổn định của các mẻ qua quy trình chế tạo	51
3.5.2. Kết quả đánh giá độ ổn định của các mẻ khi chiếu bức xạ tia X....	51
TIỂU KẾT CHƯƠNG 3	55
KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ	57
1. KẾT LUẬN	57
2. KIẾN NGHỊ.....	57
DANH MỤC TÀI LIỆU THAM KHẢO.....	58

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CÁC CHỮ VIẾT TẮT

Ký hiệu	Tiếng Anh	Tiếng Việt
JCPDS	Joint Committee on Powder Diffraction Standards	Cơ sở dữ liệu tiêu chuẩn JCPDS của Trung tâm Quốc tế dữ liệu nhiễu xạ
OSL	Optically Stimulated Luminescence	Quang phát quang
RC	Recombination Center	Mức R (bẫy lỗ trống)
RE	Rare earth	Đất hiếm
SEM	Scanning Electron Microscope	Chụp ảnh SEM
TL	Thermoluminescence	Nhiệt phát quang
TLD	Thermoluminescence Dosimeter	Liều kế nhiệt phát quang
TSDL	Tertiary Standard Dosimetry Laboratory	Phòng thí nghiệm chuẩn liều bức xạ cấp 3 (cấp cơ sở)
XRD	X-ray diffraction	Nhiễu xạ tia X
γ	Gamma radiation	Bức xạ gamma
α	Alpha radiation	Bức xạ alpha
β	Beta radiation	Bức xạ beta

DANH MỤC CÁC BẢNG

	Trang
Bảng 2.1. Các thông số hóa lý của nguyên liệu	23
Bảng 2.2. Các thông số đặc trưng của hệ phát tia X “RF-200EGM2”	26
Bảng 2.3. Thông số kỹ thuật cơ bản của hệ đọc liều Rexion UL-320	28
Bảng 2.4. Khối lượng (gam) các hóa chất được sử dụng theo 4 mẻ.....	31
Bảng 3.1. Khối lượng mẫu $K_2GdF_5:Tb$ đã chế tạo được qua 4 mẻ.....	40
Bảng 3.2. Các chỉ số Miller tương ứng vị trí các đỉnh.....	43
Bảng 3.3. Các thông số, kích thước của ô cơ sở tinh thể của 4 mẻ	44
Bảng 3.4. Kết quả số đếm của mẻ 1 vật liệu $K_2GdF_5:Tb^{3+}$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X	49
Bảng 3.5. Kết quả số đếm của mẻ 2 vật liệu $K_2GdF_5:Tb^{3+}$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X	49
Bảng 3.6. Kết quả số đếm (số xung tín hiệu) của mẻ 3 vật liệu $K_2GdF_5:Tb^{3+}$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X	50
Bảng 3.7. Kết quả số đếm (số xung tín hiệu) của mẻ 4 vật liệu $K_2GdF_5:Tb^{3+}$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X	50
Bảng 3.8. Độ hao hụt khối lượng mẫu $K_2GdF_5:Tb$ đã chế tạo so với lý thuyết	51
Bảng 3.9. Kết quả khảo sát độ đồng đều của liều kế TLD với $H_1 = 0,5$ mSv với 7 liều kế.....	52
Bảng 3.10. Kết quả khảo sát độ đồng đều của liều kế TLD với $H_2 = 10$ mSv với 7 liều kế (mẻ 1)	52
Bảng 3.11. Kết quả khảo sát độ đồng đều của liều kế TLD với $H_2 = 10$ mSv với 7 liều kế (mẻ 2)	53
Bảng 3.12. Kết quả khảo sát độ đồng đều của liều kế TLD với $H_2 = 10$ mSv với 7 liều kế (mẻ 3)	54
Bảng 3.13. Kết quả khảo sát độ đồng đều của liều kế TLD với $H_2 = 10$ mSv với 12 liều kế (mẻ 4)	54

DANH MỤC CÁC HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ

	Trang
Hình 1.1. Mô hình đơn giản nhiệt phát quang gồm 2 mức đối với hạt tải điện là điện tử.....	11
Hình 1.2. Bức xạ alpha, beta, gamma, X	16
Hình 1.3. Bức xạ neutron	17
Hình 1.4. Nhiều xạ tia X	20
Hình 1.5. Nguyên lý hoạt động và sự tạo ảnh trong SEM.....	22
Hình 2.1. Cấu trúc mạng tinh thể GdF_3 và TbF_3	23
Hình 2.2. Các hóa chất được sử dụng trong thực nghiệm.....	24
Hình 2.3 .Các thiết bị được sử dụng trong thực nghiệm.....	25
Hình 2.4. Hệ điều khiển máy phát tia X.....	26
Hình 2.5. Hệ đọc liều Rexion UL-320	27
Hình 2.6. Sơ đồ chế tạo vật liệu K_2GdF_5 pha tạp ion Tb (10%).....	30
Hình 2.7. Kiểm tra độ khan của $KF.2H_2O$	31
Hình 2.8. Cân nguyên liệu.....	32
Hình 2.9. Thùng làm mẫu và nghiền mẫu.....	32
Hình 2.10. Mẫu sau khi nghiền	33
Hình 2.11. Mẫu sau khi nung	33
Hình 2.12. Mẫu bột sau khi sấy khô	34
Hình 2.13. Quá trình cân mẫu	35
Hình 2.14. Mẫu vật trước khi chiếu	36
Hình 2.15. Sơ đồ bố trí và hình ảnh thực nghiệm đo suất liều trên máy phát tia-X.....	36
Hình 2.16. Hệ định vị tâm trường chiếu bằng tia Laze.....	37
Hình 2.17. Mẫu vật đặt trên phantom	37
Hình 2.18. Điều chỉnh vị trí chiếu của phantom	37
Hình 2.19. Đo phổ nhiệt phát quang của mẫu sau khi chiếu tia X	38
Hình 3.1. Giản đồ nhiễu xạ tia X của hợp chất K_2GdF_5 trong tập tin cơ sở dữ liệu tiêu chuẩn JCPDS No. 77-1924 của Trung tâm Quốc tế dữ liệu nhiễu xạ	41
Hình 3.2. Phổ nhiễu xạ tia X của 4 mẻ	42

Hình 3.3. Giảm đồ nhiễu xạ tia X của $K_2GdF_5:Tb$ (10%) đã chế tạo	44
Hình 3.4. Các liên kết không gian và cấu trúc mạng tinh thể K_2GdF_5	45
Hình 3.5. Cấu hình không gian của tinh thể K_2GdF_5	46
Hình 3.6. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 2 ở kích thước $5\mu m$ và $1\mu m$	47
Hình 3.7. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 4 ở kích thước $5\mu m$ và $1\mu m$	47
Hình 3.8. Phổ nhiệt phát quang của các mẻ vật liệu $K_2GdF_5:Tb$	48

MỞ ĐẦU

Để định liều bức xạ, các nhà nghiên cứu đã sử dụng nhiều phương pháp dựa trên cơ chế tương tác giữa bức xạ và vật liệu như: Cơ chế ion hóa, cơ chế phát quang [nhấp nháy, nhiệt phát quang (Thermo-Stimulated Luminescence, viết tắt là Thermoluminescence – TL), quang phát quang (Optically Stimulated Luminescence – OSL), hóa màu của thủy tinh và chất dẻo, v.v.], cơ chế phim ảnh, cơ chế nhiệt lượng, cơ chế phản ứng hóa học. Dụng cụ thụ động (Passive tool – bao gồm vật liệu, vỏ, tấm lọc,...) chế tạo dựa vào các cơ chế ở trên để định liều bức xạ được gọi là liều kế (Dosimeter) . Giá trị đo liều phụ thuộc vào rất nhiều thông số thực nghiệm như: chế độ đo, khối lượng mẫu, quy trình thao tác. Do đó, để giá trị đo liều được chính xác, cần phải nghiên cứu thời gian ủ mẫu, thời gian gia nhiệt thích hợp, các liều kế phải được chuẩn đúng khối lượng và bố trí mẫu thích hợp [1, 2].

Đối với định liều bức xạ cá nhân (Personal radiation dosimetry) trong các lĩnh vực an toàn bức xạ, người ta thường nghiên cứu, chế tạo liều kế cá nhân thụ động (Passive personal dosimeter) – là loại liều kế nhiệt phát quang (TL dosimeter – TLD) dựa trên cơ chế TL. Do có nhiều ưu điểm nên TLD được ứng dụng trong một số lĩnh vực như: Định liều bức xạ cá nhân, định liều bức xạ môi trường, định tuổi niên đại cổ vật (Dating), xác định trường liều bức xạ, đánh giá liều chẩn đoán và xạ trị cho bệnh nhân y tế, v.v. .

Nhiều năm trở lại đây, nhiều loại vật liệu TL được nghiên cứu, chế tạo thành công liều kế và sử dụng trong đo liều bức xạ photon như $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$; $\text{LiF}:\text{Mg,Ti}$ [3]. Một số vật liệu K_2GdF_5 pha tạp ion đất hiếm có tính chất TL đáp ứng tốt với liều bức xạ beta, gamma và neutron, ...và đường cong nhiệt phát quang (TL glow curve) có hình dạng khác nhau, cho phép nghiên cứu khả năng đo lọc lựa liều bức xạ hạt nhân [4, 5]. Quan tâm nhất, loại vật liệu K_2GdF_5 pha tạp 10% Tb^{3+} có độ nhạy cao với bức xạ gamma và neutron [6, 7]. Tuy nhiên, nghiên cứu vật liệu ứng dụng làm liều kế trong đo liều bức xạ hạt nhân cần nghiên cứu tính ổn định của công nghệ chế tạo vật liệu, độ đồng đều bề mặt của vật liệu.

Tình hình nghiên cứu trên thế giới và ở Việt Nam

Trên thế giới, ứng dụng làm liều kế trong đo liều bức xạ hạt nhân đối với các vật liệu nhiệt phát quang nền K_2GdF_5 rất được quan tâm. Với xu

hướng hiện nay, nhiều nguồn neutron được ứng dụng trong đời sống kinh tế - xã hội (lò phản ứng hạt nhân, công nghiệp, ...), vì thế, các cơ sở nghiên cứu đang nghiên cứu/chế tạo các loại vật liệu mới dùng để đo liều bức xạ hạt nhân theo phương pháp TL.

Về tính chất TL, các hợp chất Fluoride (F) pha tạp với ion đất hiếm (Rare earth – RE) là vật liệu đầy hứa hẹn nhằm phát triển các phương pháp đo liều bức xạ hạt nhân vì có độ nhạy TL khá cao. Việc pha tạp với ion đất hiếm (như ^{159}Tb hay ^{162}Dy) có thể nâng cao hiệu suất phát quang. Vì thế, hướng nghiên cứu, chế tạo vật liệu K_2GdF_5 pha tạp Tb hay Dy có thể dùng làm TLD để định liều bức xạ, đặc biệt là bức xạ neutron có ý nghĩa thực tiễn và có nhu cầu hiện nay.

Các kết quả nghiên cứu bước đầu mới đưa ra khả năng định liều bức xạ beta, photon và neutron dùng vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}$, nhưng chưa đi sâu vào các đặc trưng định liều bức xạ để có thể tiến tới nghiên cứu và chế tạo TLD dùng vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}$.

Tại Việt Nam, các nghiên cứu chuyên sâu về chế tạo vật liệu TL, vật liệu TL trên K_2GdF_5 và K_2YF_5 pha tạp ion đất hiếm ứng dụng trong đo liều bức xạ hỗn hợp và neutron được tiến hành bởi nhóm nghiên cứu của Viện Khoa học Vật liệu và Viện Nghiên cứu và Ứng dụng Công nghệ Nha Trang (Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam) bắt đầu vào những năm 2010 [4 - 8].

Tuy nhiên, khảo sát ban đầu của những nghiên cứu trên cho thấy vật liệu có khả năng để định liều beta, gamma, neutron chưa thực hiện hoàn chỉnh mới chỉ tổng hợp vật liệu cho một vài lần nghiên cứu, chưa khảo sát và khẳng định bảo đảm độ đồng nhất theo các mẻ chế tạo và độ ổn định của các mẻ chế tạo về mặt định liều bức xạ. Hiện nay, hướng nghiên cứu về loại vật liệu này vẫn đang được nhóm nghiên cứu tiến hành tại Viện Nghiên cứu và Ứng dụng công nghệ Nha Trang và Viện Nghiên cứu hạt nhân Đà Lạt. Để triển khai loại vật liệu này làm liều kế, trong đo liều bức xạ photon và neutron trong tương lai thì bước đầu tiên trong quá trình là khảo sát cấu trúc, độ ổn định của quy trình chế tạo vật liệu.

Mục đích nghiên cứu của luận văn: Xác định thành phần, cấu trúc vật liệu và độ đồng đều của mẫu được chế tạo để đánh giá độ ổn định của quy

trình chế tạo vật liệu $K_2GdF:Tb$ (10%) dạng bột bằng nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang của vật liệu với bức xạ hạt nhân.

Nội dung của luận văn gồm có:

Nghiên cứu tổng quan

- + Thu thập các tài liệu nghiên cứu liên quan đến đề tài.
- + Xây dựng đề cương chi tiết và hoàn thành phần tổng quan của luận văn.

Tiến hành chế tạo các mẻ vật liệu K_2GdF_5 pha tạp Tb nồng độ 10% theo phương pháp phản ứng pha rắn tại phòng thí nghiệm

- + Nghiên cứu các thành phần nguyên liệu.
- + Nghiên cứu kỹ thuật làm khan KF.
- + Kỹ thuật nghiền mẫu.
- + Nung mẫu thực hiện phương pháp pha rắn.
- + Kỹ thuật sấy và ủ nhiệt sản phẩm.

Khảo sát tính ổn định của quy trình chế tạo K_2GdF_5 pha tạp Tb nồng độ 10%

- + Đo phổ nhiễu xạ tia X và đo ảnh SEM của các mẫu vật liệu.
- + Khảo sát các tính chất cấu trúc vật liệu của các mẫu nghiên cứu
- + Chiếu bức xạ tia X lên mẫu vật liệu.
- + Phân tích các số liệu thực nghiệm và đánh giá tính ổn định của các mẻ vật liệu được chế tạo.

Cơ sở khoa học và tính thực tiễn của đề tài: Các nội dung chính của đề tài giúp hiểu rõ các bước trong quy trình chế tạo vật liệu K_2GdF_5 pha tạp Tb nồng độ 10%, về tính chất nhiệt phát quang, về hình dạng, cấu trúc tinh thể, được quan tâm triển khai nghiên cứu, chế tạo trên thế giới và đồng thời là đề tài nghiên cứu và chế tạo vật liệu K_2GdF_5 tại Việt Nam.

Nghiên cứu độ ổn định của quy trình chế tạo vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ nồng độ 10% qua các mẻ chế tạo nhằm định hướng ứng dụng làm liều kế trong đo liều bức xạ hạt nhân.

Chương 1: TỔNG QUAN NGHIÊN CỨU

1.1. LÝ THUYẾT NHIỆT PHÁT QUANG

1.1.1. Hiện tượng nhiệt phát quang

Hiện tượng nhiệt phát quang là hiện tượng phát xạ ánh sáng của một vật liệu (chất bán dẫn hoặc điện môi) sau khi chiếu xạ bằng các bức xạ như tia X, tia alpha (α), tia beta (β) hoặc tia gamma (γ) khi bị nung nóng [9].

Cụ thể, hiện tượng nhiệt phát quang xảy ra khi vật liệu tồn tại các mức năng lượng nằm trong vùng cấm (bẫy điện tử và lỗ trống). Chiếu xạ bức xạ ion hóa vào vật liệu thì điện tử bị bắt tại bẫy và lỗ trống bị bắt tại tâm phát quang. Trong quá trình nung nóng vật liệu bằng kích thích nhiệt, điện tử sẽ nhận được nhiệt năng và thoát ra khỏi bẫy, để phát ra photon, điện tử phải tái hợp với lỗ trống tại tâm tái hợp. Nếu thực hiện nung nhiệt một lần nữa thì điện tử thoát ra khỏi bẫy và không phát quang.

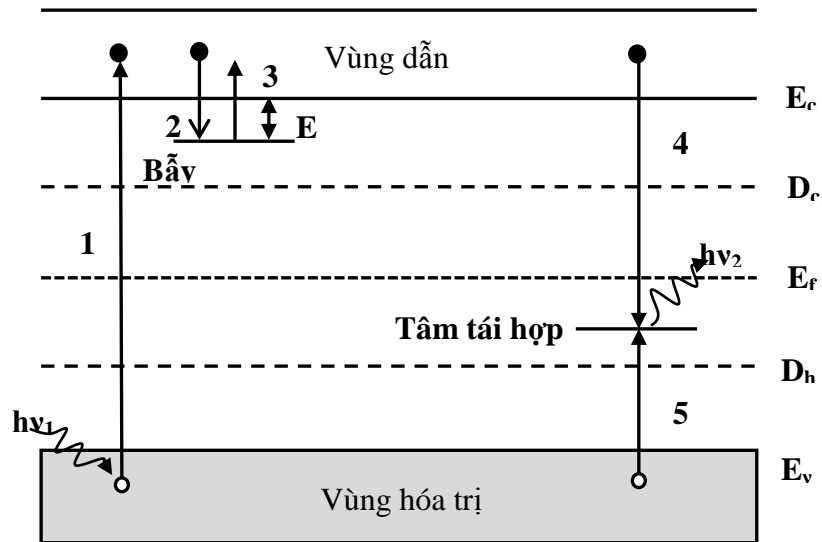
Hai quá trình vật lý có liên quan đến hiện tượng nhiệt phát quang của các vật liệu đó là [10]:

- Quá trình hình thành các khuyết tật trong mạng tinh thể đóng vai trò các bẫy và tâm tái hợp trong vật liệu.

- Quá trình tích lũy của các điện tích trong bẫy do chiếu xạ và quá trình tái hợp điện tử - lỗ trống do cường độ bức nhiệt phát quang.

1.1.2. Cơ chế nhiệt phát quang

Để giải thích các tính chất nhiệt phát quang, có thể sử dụng lý thuyết vùng năng lượng của vật rắn [9]. Khi nhiệt độ rất thấp thì một tinh thể bán dẫn hoặc điện môi lý tưởng có các mức năng lượng nằm trong vùng hóa trị sẽ bị chiếm đầy bởi các điện tử. Ở một vùng khác, các mức năng lượng còn trống (nghĩa là chưa bị chiếm bởi các điện tử) gọi là vùng dẫn; vùng này tách khỏi vùng hóa trị bởi một khe năng lượng (Xem Hình 1.1).



Hình 1.1. Mô hình đơn giản nhiệt phát quang gồm 2 mức đối với hạt tải điện là điện tử

+ Mức T – bẫy điện tử, chỉ có khả năng bắt điện tử trong vùng dẫn bẫy điện tử (Trap) nằm ở phía trên mức Fermi – E_f cân bằng và trước khi mẫu bị chiếu xạ mức này ở trạng thái hoàn toàn bị trống.

+ Mức R (Recombination Center – RC) – bẫy lỗ trống, có khả năng bắt lỗ trống trong vùng hóa trị và bắt điện tử từ vùng dẫn nên đóng vai trò tâm tái hợp.

Các dịch chuyển cho phép:

- (1) Quá trình ion hoá.
- (2), (5) Quá trình bẫy điện tử, lỗ trống tương ứng.
- (3) Quá trình giải thoát điện tử ra khỏi bẫy bằng nhiệt.
- (4) Quá trình phát quang khi tái hợp.

Khi chiếu xạ bởi các tia bức xạ (tia UV, X, gamma, neutron...) vào vật liệu thì các bức xạ ion hóa nguyên tử trung hòa, làm bật điện tử lên vùng dẫn, để lại vùng hóa trị một lỗ trống và tạo ra cặp điện tử và lỗ trống (dịch chuyển 1). Trong vùng dẫn, vùng hóa trị, điện tử và lỗ trống chuyển động tự do và bị bắt tại các bẫy. Điện tử muốn giải phóng khỏi bẫy, thì cần đốt nóng vật liệu lên một nhiệt độ nhất định, khi đó năng lượng của các điện tử tăng lên đủ năng lượng để thoát ra khỏi bẫy và nhảy lên trên vùng dẫn (dịch chuyển 3). Điện tử sẽ không thể tồn tại lâu trên vùng dẫn mà phải tái hợp với lỗ trống. Quá trình tái hợp và bức xạ ion hoá (dịch chuyển ngược với 1) tại tâm phát quang (dịch chuyển 4), hay tái bẫy (dịch chuyển 2) sẽ có các hạt mang điện tự do tham gia. Điện tử, lỗ trống tự do tái hợp trực tiếp, năng lượng được giải

phóng ra dưới dạng bức xạ sóng điện từ (photon). Có thể xảy ra trường hợp một phần năng lượng được giải phóng ra dùng để kích thích một tâm huỳnh quang (tâm này có thể trùng với tâm tái hợp). Tâm huỳnh quang phát xạ ánh sáng trở về trạng thái cơ bản và tham gia hai quá trình chính: quá trình tái hợp với lỗ trống tại tâm phát quang để phát bức xạ ion hoá và quá trình tái bẫy.

Khi các điện tử tự do bị tái bẫy thì chỉ sinh ra nhiệt mà không phát quang. Do đó, sự phát quang chủ yếu là do sự tái hợp với lỗ trống tại tâm phát quang (dịch chuyển 4, 5).

Tóm lại, khi có sự đảo mật độ từ trạng thái cân bằng nhiệt động sang trạng thái nửa bền và hồi phục cưỡng bức nhiệt về trạng thái cân bằng ban đầu thì nhiệt phát quang xảy ra.

1.1.3. Vật liệu nhiệt phát quang

Vật liệu nhiệt phát quang là vật liệu có khả năng hấp thụ và tích lũy năng lượng ion hóa trong quá trình bị phơi chiếu bởi các bức xạ như tia X, α , β hoặc γ . Khi bị đốt nóng, năng lượng sẽ được giải phóng dưới dạng ánh sáng.

Với mục đích hướng tới chế tạo liều kế (TLD), các vật liệu TL phải có một số đặc tính sau [3,9]:

- Đường cong tích phân biểu diễn mối liên hệ giữa cường độ nhiệt phát quang và nhiệt độ có cấu trúc đỉnh chính rõ ràng, và nhiệt độ của đỉnh chính trong đo liều bức xạ nằm trong khoảng từ 150°C đến 400°C.

- Cường độ nhiệt phát quang phải tỉ lệ tuyến tính tốt với liều chiếu bức xạ. Hiệu suất phát xạ cao và ngưỡng liều thấp để có được độ nhạy cao. Sự ổn định của giá trị đo khi lưu trữ ở nhiệt độ phòng hay fading nhỏ (mật độ điện tử bị bắt trong bẫy sẽ suy giảm theo thời gian, khả năng lưu trữ năng lượng từ lúc bức xạ đến lúc đo sẽ giảm gây nên sai số trong đo liều). Cường độ nhiệt phát quang ít phụ thuộc vào năng lượng của bức xạ.

- Vật liệu có nồng độ pha tạp tối ưu để có độ nhạy TL cao nhất.

- Vật liệu phải đồng nhất (đồng đều mẫu), không chịu ảnh hưởng của môi trường, có khả năng tái sử dụng.

Vật liệu nhiệt phát quang đã được nghiên cứu và sử dụng trong đo liều phóng xạ như trong công nghiệp, y tế, môi trường, nghiên cứu hạt nhân... Trong đó các vật liệu: $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, $\text{LiF}:\text{Mg}$, Ti thể hiện độ nhạy với bức xạ gamma, tuy nhiên độ nhạy của chúng với các loại bức xạ beta và neutron đều thấp. Vì vậy, việc tìm kiếm các loại vật liệu nhiệt phát quang mới thỏa mãn

các yêu cầu khắt khe về độ nhạy, độ tuyến tính, độ fading... với các loại tia bức xạ khác nhau là nhu cầu cần thiết [4, 5]. Những vật liệu mới sau khi chế tạo cần nghiên cứu chi tiết các tính chất nhiệt phát quang liên quan đến lĩnh vực đo liều [9]. Một số cơ sở bắt đầu nghiên cứu về các vật liệu K_2YF_5 và K_2GdF_5 pha tạp với Dy và Tb, có chứa thành phần Gd nhạy với neutron bằng phương pháp thủy nhiệt [6]. bước đầu những nghiên cứu cho thấy, nguyên tố Gadolinium có tiết diện bắt neutron nhiệt rất cao ($4,9.10^4$ barn) và hợp chất fluoride pha tạp đất hiếm có tính nhiệt phát quang khá mạnh nên nguyên tố này đặc biệt thích hợp trong ứng dụng liều kế neutron [7].

Ở Việt Nam, một số năm trở lại đây các cơ sở nghiên cứu thuộc Viện Khoa học Vật liệu, Viện Nghiên cứu và Ứng dụng công nghệ Nha Trang – thuộc Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, Đại học Huế, ... đã và đang nghiên cứu về một số vật liệu TL nhằm hướng tới ứng dụng trong định liều bức xạ (chủ yếu là định liều bức xạ photon) trên cơ sở nghiên cứu và chế tạo một số vật liệu như: $CaSO_4:Dy$; $LiF:Mg,Cu,Na,Si$; Al_2O_3 ; $Li_2B_4O_7:Cu$; $Sr_3B_2O_6:Eu^{3+}$; $Sr_3B_2O_6:Eu^{2+}$; $K_2YF_5:Tb^{3+}$; ... [8,11- 13].

Liên quan đến vật liệu $K_2GdF_5:Tb$, nhằm hướng tới ứng dụng trong định liều bức xạ, Viện Nghiên cứu và Ứng dụng công nghệ Nha Trang đã bước đầu nghiên cứu và chế tạo được vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ dạng bột, khảo sát ở những giá trị nồng độ pha tạp Tb 2%, 5%, 10%, 15% và 20%, theo phương pháp pha rắn với điều kiện phòng thí nghiệm nhỏ. Trong đó, kết quả cho thấy vật liệu K_2GdF_5 pha tạp 10% Tb có tính hiệu nhiệt phát quang cao và tương đối phù hợp sử dụng làm liều kế bức xạ hạt nhân [1,2,4,7,14 - 18]. Tuy nhiên, để triển khai sử dụng vật liệu này làm liều kế cần những nghiên cứu sau hơn, một trong những vấn đề đó là khảo sát tính ổn định của vật liệu qua các mẻ chế tạo.

1.2. BỨC XẠ HẠT NHÂN VÀ CÁC PHƯƠNG PHÁP GHI ĐO

1.2.1. Bức xạ alpha

Hạt alpha (α) là một dạng bức xạ hạt ion hóa có năng lượng cao, không có khả năng xâm nhập vào các mô. Hạt alpha gồm hai proton và hai neutron, liên kết với nhau thành một hạt giống như hạt nhân nguyên tử Helium. Do đó, hạt alpha có thể viết là He^{2+} , có tốc độ khoảng 20.000 km/s và không truyền đi xa trong không gian [20].

Bức xạ alpha được phát ra bởi các nguyên tử của các nguyên tố nặng như Uran, Radi. Radon và Plutoni.

Một số đặc điểm của bức xạ alpha:

- Lớp ngoài cùng của da người hấp thụ được nên bức xạ alpha không có khả năng xuyên qua da.

- Vật liệu phát ra alpha có thể gây nguy hiểm nếu vật liệu được hít phải, nuốt phải hoặc hấp thụ qua vết thương hở.

1.2.2. Bức xạ beta

Bức xạ beta là một dạng bức xạ ion hóa do một số loại hạt nhân phóng xạ phát ra, là tên gọi chung của positron (e^+ , β^+) và điện tử (e^- , β^-), phát ra trong quá trình phân rã beta của hạt nhân và của neutron ở trạng thái tự do với vận tốc khoảng 100.000 km/s.

Tia beta được phát ra từ các vật liệu phóng xạ như Triti; Carbon-14; Photpho-32; Stronti-90.

Đồng vị Stronti-90 (^{90}Sr) thể hiện tính phóng xạ, có chu kỳ bán rã 28,90 năm, phân rã tia β^- để trở thành ^{90}Y với một năng lượng phân rã là 0,546 MeV. Sau đó, nguyên tố này tiếp tục phân rã β^- trở thành ^{90}Zr với năng lượng phân rã 2,28 MeV.

Một số đặc điểm của bức xạ beta:

- Bức xạ beta có thể xuyên qua lớp da của con người, nếu mức độ phát xạ beta với năng lượng cao được chiếu đến da trong một thời gian dài thì chúng có thể gây tổn thương da và tổn thương sâu hơn.

- Các chất phát ra bức xạ beta có thể có hại nếu hấp thụ và lắng đọng bên trong cơ thể.

Trong số ba loại bức xạ phổ biến do các chất phóng xạ phát ra (alpha, beta và gamma), beta có khả năng xuyên thấu trung bình và khả năng ion hóa trung bình. Mặc dù các hạt beta phát ra bởi các vật liệu phóng xạ khác nhau có năng lượng khác nhau, nhưng hầu hết các hạt beta bị chặn lại bởi một vài milimét nhôm. Khi chúng giảm tốc trong vật chất, các electron phát ra các tia gamma thứ cấp, có khả năng đâm xuyên sâu hơn so với bản thân beta. Lá chắn bao gồm các vật liệu có trọng lượng nguyên tử thấp hơn, tạo ra các gamma có năng lượng thấp hơn. Khi đi xuyên qua vật chất, một hạt beta bị giảm tốc do tương tác điện từ và có thể phát ra tia X bức xạ hãm.

Bức xạ beta từ nhiều sản phẩm phân hạch hạt nhân thường vượt quá tốc độ ánh sáng trong vật liệu (bằng 75% tốc độ ánh sáng trong chân không). Do đó, bức xạ beta có cường độ cao từ các thanh nhiên liệu của lò phản ứng .

1.2.3. Bức xạ gamma

Bức xạ gamma (tia gamma) là bức xạ điện từ có tần số cực cao. Bức xạ gamma không làm thay đổi hàm lượng proton của hạt nhân nên ổn định hạt nhân. Vì năng lượng lớn nên tia gamma có khả năng ion hóa mạnh trong môi trường vật chất, đi được những khoảng cách lớn trong không khí, có khả năng đâm xuyên mạnh và không bị ảnh hưởng bởi điện trường hoặc từ trường. Khi tương tác ion hóa tia gamma mất dần năng lượng, không thuần nhất về bước sóng và photon hiện ra các vệt ion hóa có dạng đường thẳng [21].

Tia gamma được tạo ra do sự phân rã các chất phóng xạ như Co-60 và Cs-137. Trong đời sống, tia gamma được sử dụng rộng rãi trong nhiều ngành như: an ninh, chế biến thực phẩm, y tế, dầu khí, cơ khí, quân sự, khai khoáng, khoa học vật liệu, xây dựng, ...

1.2.4. Bức xạ tia X

Tia X hay tia Ronghen là một dạng sóng điện từ, có bước sóng khoảng 0,01 nm đến 10 nm, ngắn hơn tia tử ngoại, dài hơn tia gamma. Tia X có đặc điểm tương tự như tia gamma, được tạo ra trong ống tia X và không có tính phóng xạ.

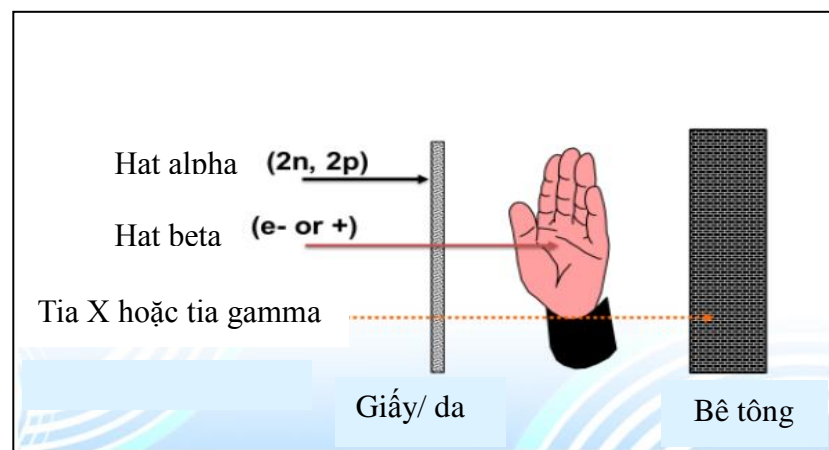
Tia X có thể được tạo ra bởi hai hiệu ứng khác nhau. Các tia X năng lượng tương đối thấp, được phát ra bởi các electron khi chúng thực hiện chuyển đổi giữa các mức năng lượng khác nhau trong nguyên tử. Những tia X như vậy có năng lượng xác định bởi các số hiệu nguyên tử và sự chuyển tiếp điện tử. Năng lượng cao nhất có thể đạt được theo cách này là sự chuyển đổi của một electron không liên kết sang mức k của uranium (115,6 keV). Các tia X năng lượng cao hơn với phổ năng lượng rộng được phát ra bởi các electron được gia tốc khi chúng đi qua gần hạt nhân nguyên tử và bị điện trường làm lệch hướng. Tia X được tạo ra theo cách này có phổ liên tục của năng lượng photon kéo dài từ khoảng 30 keV cho đến năng lượng cực đại bằng động năng của electron tới [6]. Tia X cực mạnh có thể đi qua lớp nhôm dày vài mm mà không bị hấp thụ hoặc phân tán nhiều. Do đó, các tia X được sử dụng để kiểm tra hình ảnh bên trong các vật thể, thường được dùng kiểm tra hành lý tại an ninh sân bay, để chụp X quang trong y tế [22].

Một số ưu điểm của việc sử dụng tia X so với việc sử dụng nguồn bức xạ gamma:

- Có thể thay đổi năng lượng của chùm tia X bằng thông số điện cao áp (HV) để khảo sát các vị trí (độ sâu) khác nhau trong vật thể.
- Bảo đảm kiểm soát về vấn đề an ninh.

Đối với máy phát tia X được cấu tạo gồm hai bộ phận chính: hệ điều khiển quá trình phát tia và ống phát tia X. Ống phát tia X nhận năng lượng điện và biến thành hai dạng năng lượng: bức xạ tia X và nhiệt năng. Trong đó, nhiệt năng chiếm khoảng 99%, chỉ khoảng 1% năng lượng biến thành tia X. Ống phát tia X là ống chân không gồm hai điện cực anốt và catốt. Nguồn điện thế cao giữa anốt và catốt sinh ra các electron tự do, ở catốt được gia tốc đến anốt với vận tốc cao và tương tác với vật chất bia sinh ra bức xạ tia X.

Bản chất của bức xạ alpha, beta, gamma, tia X được biểu diễn Hình 1.2.



Hình 1.2. Bức xạ alpha, beta, gamma, X

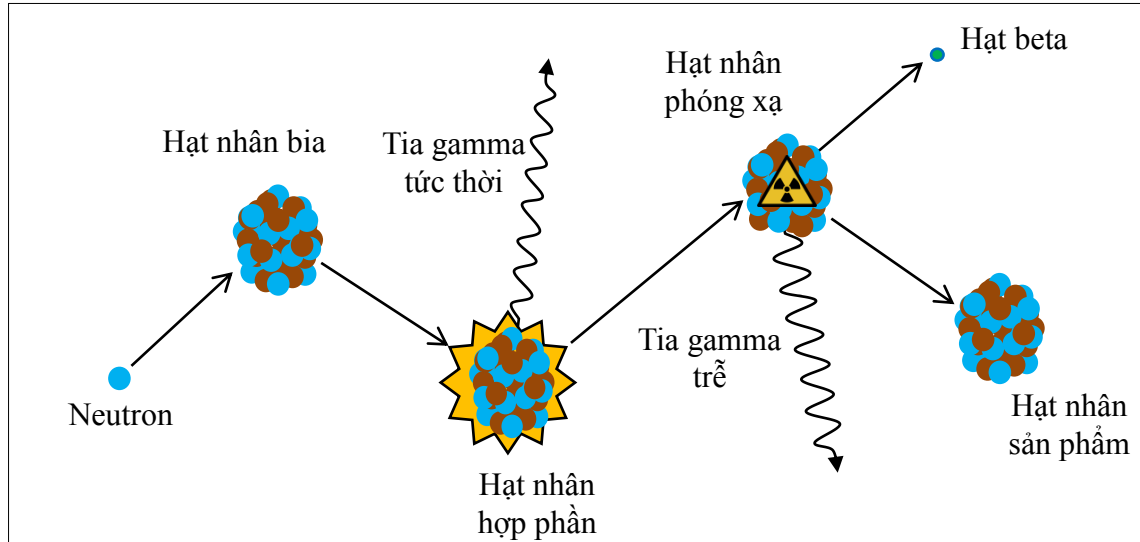
1.2.5. Bức xạ neutron

Bức xạ neutron là một dạng bức xạ ion hóa biểu hiện dưới dạng các neutron tự do, khối lượng gần bằng khối lượng proton (khoảng $1,6 \cdot 10^{-27}$ kg). Bức xạ neutron có thể xuyên qua vật chất tương đối dễ dàng vì không có tương tác điện với các electron, điện tích trong hạt nhân nguyên tử.

Alpha, beta có thể gây ra sự ion hóa trực tiếp và các ion hình thành có thể đo lường được nhưng neutron thì tương tác bằng cách va chạm với nguyên tử. Tùy thuộc vào góc độ, tốc độ và kích thước của các thành phần trong những lần va chạm, mà neutron chuyển khoảng 0 – 100% năng lượng.

Các hiện tượng điển hình là phản ứng tổng hợp hạt nhân sự phân hạch hạt nhân gây ra sự giải phóng các neutron tự do, sau đó phản ứng với các hạt

nhân của các nguyên tử khác để tạo ra các đồng vị mới. Bên cạnh đó, một số nguồn neutron được thực hiện bằng cách kết hợp các đồng vị phát alpha như polonium hoặc bức xạ với berili. Một nguồn neutron như ^{252}Cf do phân hạch tự phát (Xem Hình 1.3).



Hình 1.3. Bức xạ neutron

1.2.6. Các phương pháp ghi đo bức xạ

Có 6 hiệu ứng vật lý khác nhau khi bức xạ hạt nhân tương tác với vật chất được sử dụng trong phương pháp và kỹ thuật ghi đo bức xạ.

- Hiệu ứng ion hoá,
- Hiệu ứng nhấp nháy,
- Nhiệt phát quang,
- Các cơ chế hoá học,
- Hiệu ứng đốt nóng,
- Cơ chế sinh học.

1.3. TỔNG QUAN CHẾ TẠO VẬT LIỆU THEO PHƯƠNG PHÁP PHA RẮN

1.3.1. Cơ sở lý thuyết

Phản ứng pha rắn là phản ứng đặc trưng bằng tương tác giữa chất rắn với chất rắn khi nung nguyên liệu ở nhiệt độ cao. Trong quá trình có thể xảy ra nhiều quá trình hoá, lý phức tạp như: quá trình thiêu kết, quá trình tạo thành khuyết tật trong mạng tinh thể, tương tác hoá học, quá trình chuyển pha, ... [7].

Phản ứng pha rắn chỉ xảy ra tại bề mặt tiếp xúc tại hai pha rắn của chất tham gia khi nung hỗn hợp. Nhiệt độ phản ứng, các tâm phản ứng được hình thành ở bên cạnh các khuyết tật hay tại các cấu trúc tinh thể vừa mới bị phân hủy, tỷ lệ với tốc độ của phản ứng pha rắn. Ban đầu, mạng pha cũ bị xô lệch phát triển làm các tâm phản ứng tăng dần và tạo điều kiện cho tâm mới xuất hiện. Tốc độ phản ứng tăng lên nhanh chóng nếu các tâm này tồn tại độc lập hoặc phủ lên nhau tạo thành một mặt thống nhất. Sau đó, tốc độ phản ứng giảm xuống khi bề mặt ranh giới pha giảm. Quá trình khuếch tán các chất phản ứng trong sản phẩm quyết định tốc độ của phản ứng pha rắn. Bên cạnh đó, tốc độ phản ứng còn phụ thuộc vào kích thước của hạt, các khuyết tật trong mạng tinh thể, cấu trúc của nguyên liệu, thành phần của hỗn hợp và sản phẩm.

Như vậy, phản ứng pha rắn xảy ra chủ yếu dựa trên cơ chế khuếch tán trong tinh thể bằng cách di chuyển các nút trống, các ion hay các nguyên tử xen kẽ.

1.3.2. Các yếu tố ảnh hưởng

- Cấu trúc tinh thể

Ngoài thành phần hóa học và thành phần pha, phản ứng pha rắn còn phụ thuộc vào cấu trúc mạng tinh thể. Khi chất chuyển đến bề mặt phản ứng trong quá trình khuếch tán thì năng lượng hoạt hóa và nồng độ của chất rắn phụ thuộc vào trạng thái tinh thể. Sự sai lệch cấu trúc do sự tồn tại khuyết tật không cân bằng tác động và điều này liên quan đến hình thái của tinh thể.

- Kích thước hạt

Kích thước hạt tác động đến tốc độ phản ứng nên ảnh hưởng đến quá trình khuếch tán cũng như chất lượng của sản phẩm. Diện tích bề mặt riêng sẽ tăng lên khi nguyên tử được nghiền nhỏ, điều này làm tăng diện tích tiếp xúc giữa các hạt nguyên liệu và làm xuất hiện khuyết tật ở bề mặt. Ngoài ra, yêu cầu về độ đồng đều của sản phẩm cũng ảnh hưởng đến các yếu tố nhiệt độ hòa tan, diện tích bề mặt, nhiệt độ nóng chảy, năng lượng bề mặt, bề dày của lớp sản phẩm, tương tác hóa học, ... [19].

- Nhiệt độ nung

Thông số cơ bản ảnh hưởng đến tốc độ phản ứng là nhiệt độ. Theo Van Hoff, nhiệt độ tăng lên 10°C thì phản ứng tăng lên 2 lần - 4 lần theo biểu thức sau:

$$\gamma = \frac{k_{t+10}}{k_t} \quad (1.1),$$

trong đó γ : hệ số nhiệt độ
 k : hằng số tốc độ.

Biểu thức hệ số khuếch tán biến thiên theo nhiệt độ như sau

$$D = D_0 \cdot e^{-Q/RT} \quad (1.2),$$

trong đó Q : năng lượng hoạt hóa.

1.4. MỘT SỐ PHƯƠNG PHÁP XÁC ĐỊNH CẤU TRÚC VẬT LIỆU

1.4.1. Kỹ thuật nhiễu xạ tia X

Nhiễu xạ X-ray (Powder X-ray diffraction) là kỹ thuật phân tích, cung cấp thông tin cấu trúc tinh thể, giai đoạn, định hướng tinh thể và các thông số cấu trúc khác như: các khuyết tật tinh thể hay kích thước trung bình hạt [23].

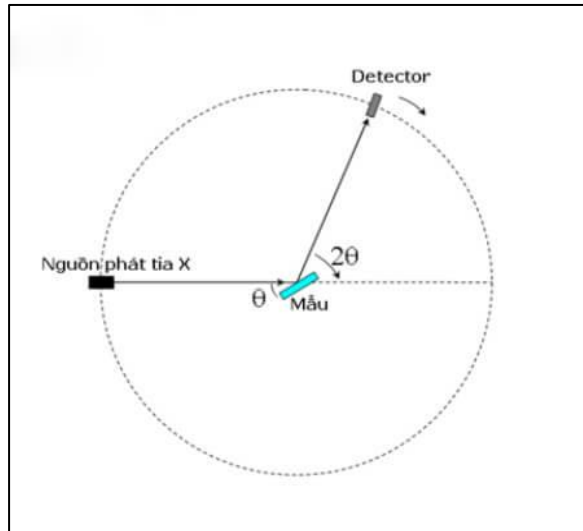
Bản chất của nhiễu xạ tia X là hiện tượng các chùm tia X nhiễu xạ trên các mặt tinh thể của chất rắn. Các phổ nhiễu xạ cực đại và cực tiểu được tạo nên do tính tuần hoàn của cấu trúc tinh thể. Về bản chất vật lý, thì nhiễu xạ tia X gần giống với nhiễu xạ điện tử và sự khác nhau trong tính chất phổ nhiễu xạ do sự khác nhau về tương tác giữa tia X với nguyên tử, sự tương tác giữa điện tử và nguyên tử. Kỹ thuật nhiễu xạ tia X được sử dụng để phân tích cấu trúc chất rắn hay vật liệu... Định của nhiễu xạ X-ray được tạo ra do sự giao thoa của một chùm tia X nhiễu xạ ở góc độ nhất định từ bề mặt mạng tinh thể trong một mẫu. Sự phân bố của các nguyên tử trong mạng tinh thể là đặc trưng của các đỉnh giao thoa.

Nhiễu xạ tia X đang sử dụng rộng rãi trong việc xác định các vật liệu tinh thể chưa biết như: khoáng chất, kỹ thuật và sinh học, hợp chất vô cơ trong các các nghiên cứu về khoa học vật liệu, địa chất, khoa học môi trường. Các ứng dụng nhiễu xạ tia X bao gồm:

- Xác định đặc tính của các tinh thể vật liệu;
- Đo độ tinh khiết mẫu;
- Xác định các khoáng chất hạt mịn như đất sét và đất sét hỗn hợp;
- Xác định kích thước đơn vị tinh thể;
- Xác định các thành phần của các khoáng chất;
- Xác định cấu trúc tinh thể sử dụng Rietveld;

- Thực hiện đo đạc kết cấu như: sự định hướng của các hạt, trong một mẫu đa tinh thể [24].

Nhiễu xạ X-Ray vật liệu bột là phương pháp sử dụng cho các mẫu đa tinh thể, sử dụng rộng rãi nhất trong việc xác định cấu trúc tinh thể bằng cách chiếu vào mẫu một chùm tia X hẹp, song song, năng lượng hẹp. Thực hiện quay mẫu và cảm biến thu chùm nhiễu xạ trên một đường tròn đồng tâm, sau đó ghi lại cường độ chùm tia phản xạ và phổ nhiễu xạ (xem Hình 1.4).



Hình 1.4. Nhiễu xạ tia X

Phổ nhiễu xạ là biểu đồ biểu diễn cường độ nhiễu xạ với 2 lần góc nhiễu xạ (2θ). Đối với các mẫu dạng màng mỏng, thực hiện chiếu tia X tới mẫu dưới góc rất hẹp để tăng chiều dài tia X tương tác với màng mỏng, giữ cố định mẫu và chỉ quay cảm biến.

Đối với các mẫu đơn giản nhất, các tâm điện tích cách nhau một khoảng d , cường độ tán xạ lớn hơn tạo giao thoa cộng hưởng, thỏa mãn phương trình Bragg [24].

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (1.3),$$

trong đó

λ : bước sóng tia X

d : khoảng cách giữa hai mặt phẳng tinh thể kế tiếp trong họ các mặt phẳng tinh thể

θ : góc giữa tia tới và mặt phản xạ

n : bậc phản xạ (số nguyên dương).

Ưu điểm và hạn chế của nhiễu xạ tia X.

* Ưu điểm:

- Khi xác định một khoáng chất chưa biết có kết quả nhanh (<20 phút).

- Thiết bị XRD tương đối phổ biến với chi phí trung bình.
- Cung cấp thông tin định lượng khoáng chất
- Giải thích dữ liệu tương đối đơn giản.
- Chuẩn bị mẫu đơn giản.

* Hạn chế:

- Khi xác định các vật liệu chưa biết thì các vật liệu phải đồng nhất.
- Phải có thư viện tham chiếu chuẩn của các hợp chất vô cơ.
- Vật liệu dạng bột thì yêu cầu mẫu có từ 0,1 gam.
- Vật liệu dạng hỗn hợp thì giới hạn phát hiện là ~ 2% mẫu
- Ứng dụng xác định đơn vị ô tinh thể, việc lập chỉ mục các mẫu cho các hệ tinh thể không đẳng cự phức tạp.

- Cộng hưởng bề mặt xảy ra do ảnh hưởng của tín hiệu “phản xạ” ở góc cao.

1.4.2. Chụp ảnh SEM

SEM (Scanning Electron Microscope) là kính hiển vi điện tử có thể tạo ra ảnh của bề mặt mẫu với độ phân giải cao bằng cách sử dụng một chùm điện tử hẹp quét trên bề mặt mẫu. Chùm điện tử sẽ tương tác với các nguyên tử nằm gần hoặc tại bề mặt mẫu sinh ra các tín hiệu (bức xạ) chứa các thông tin về hình ảnh của bề mặt mẫu, thành phần nguyên tố và tính chất dẫn điện [8, 18].

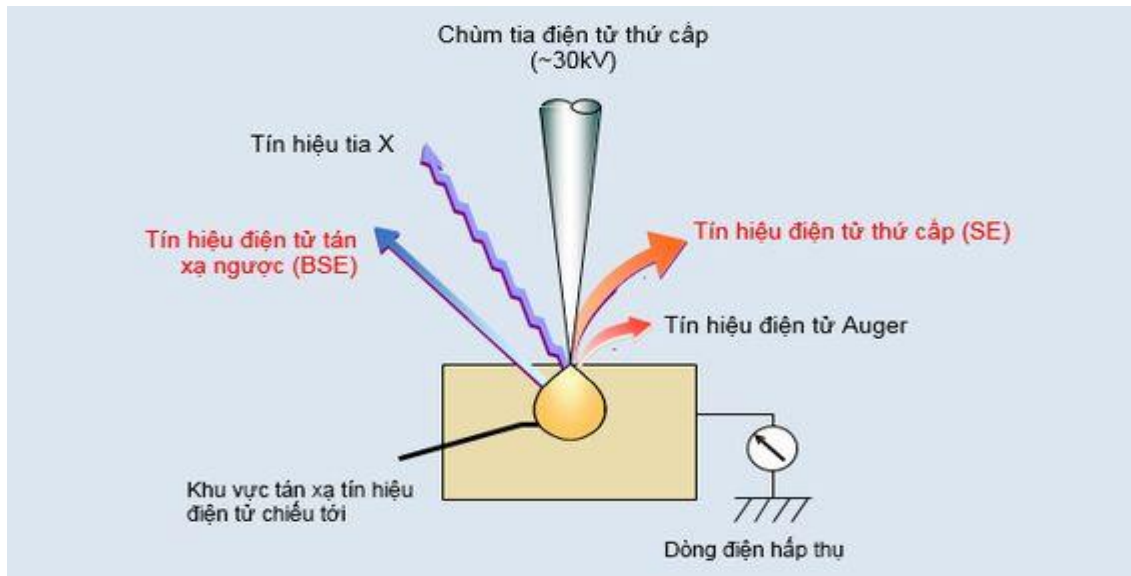
Các tính năng của SEM:

- Quan sát bề mặt mẫu chất rắn ở các độ phóng đại khác nhau.
- Độ sâu trường quan sát lớn hơn rất nhiều so với kính hiển vi quang học, cho phép thu ảnh lập thể.
- Phân tích thành phần nguyên tố của vùng quan sát khi kết hợp với đầu thu phổ tán xạ năng lượng tia X.

Nguyên lý hoạt động và sự tạo ảnh SEM

Việc phát các chùm điện tử trong SEM giống như việc tạo ra chùm điện tử trong kính hiển vi điện tử truyền qua, tức là điện tử được phát ra từ súng phóng điện tử (phát xạ nhiệt, hay phát xạ trường...), sau đó được tăng tốc. Tuy nhiên, thế tăng tốc của SEM từ 10 kV đến 50 kV vì sự hạn chế của thấu kính từ nên việc hội tụ các chùm điện tử có bước sóng quá nhỏ vào một điểm kích thước nhỏ sẽ khó khăn. Điện tử sau khi phát ra, sẽ tăng tốc và hội tụ thành một chùm điện tử hẹp (cỡ vài trăm Angstrom đến vài nanomet), sau đó

quét trên bề mặt mẫu nhờ các cuộn quét tĩnh điện. Độ phân giải của SEM được xác định từ kích thước chùm điện tử hội tụ, tuy nhiên, kích thước này bị hạn chế bởi quang sai. Ngoài ra, độ phân giải của SEM còn phụ thuộc vào tương tác giữa vật liệu tại bề mặt mẫu vật và điện tử. Khi điện tử tương tác với bề mặt mẫu vật, sẽ có các bức xạ phát ra, sự tạo ảnh trong SEM và các phép phân tích được thực hiện thông qua việc phân tích các bức xạ này (Xem Hình 1.5).



Hình 1.5. Nguyên lý hoạt động và sự tạo ảnh trong SEM

TIÊU KẾT CHƯƠNG 1

Chương 1 trình bày được lý thuyết các nội dung:

- *Lý thuyết cơ bản và cơ chế nhiệt phát quang.*
- *Bản chất, đặc điểm của các bức xạ hạt nhân và các phương pháp ghi đo.*
- *Các khái niệm về phương pháp phản ứng pha rắn và các yếu tố ảnh hưởng đến phản ứng như: kích thước hạt, cấu trúc tinh thể, nhiệt độ nung*
- *Các phương pháp xác định cấu trúc vật liệu như: kỹ thuật nhiễu xạ tia X và chụp ảnh SEM.*

Chương 2. ĐỐI TƯỢNG VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. ĐỐI TƯỢNG NGHIÊN CỨU

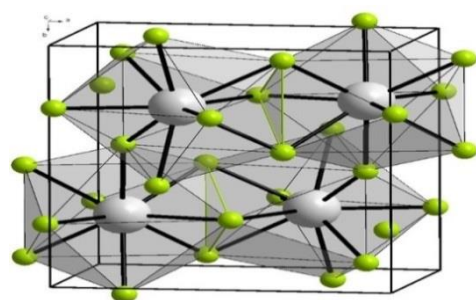
2.1.1. Các tính chất hóa lý của nguyên liệu

Các nghiên cứu trong luận văn bao gồm việc chế tạo K_2GdF_5 pha tạp ion đất hiếm Tb^{3+} theo phương pháp phản ứng pha rắn. Các nguyên liệu được sử dụng bao gồm KF, GdF_3 và TbF_3 mua từ hãng Sigma-Aldrich (99,99%), các vật liệu này có những đặc tính hóa lý nêu trong bảng 2.1.

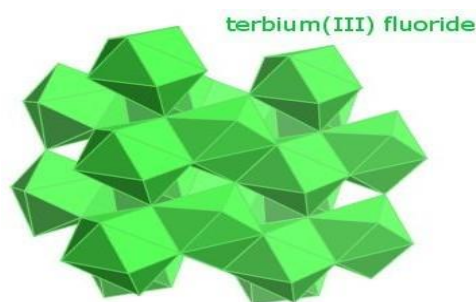
Bảng 2.1. Các thông số hóa lý của nguyên liệu

Hóa chất	KF	GdF_3	TbF_3
Đặc tính			
Màu sắc	Không màu	Màu trắng	Màu trắng
Ngoại hình	Dạng tinh thể, dễ chảy nước	Tinh thể rắn	Tinh thể rắn
Điểm nóng chảy	858°C (khan)	1312°C	1172°C
Nhiệt độ sôi	1502°C	3273°C	2277°C
Nguyên tử lượng	57,998 g.mol ⁻¹	214,234 g.mol ⁻¹	215,924 g.mol ⁻¹
Mật độ	2,480 g.cm ⁻³	7,047 g.cm ⁻³	7,230 g.cm ⁻³

- Các hợp chất GdF_3 , TbF_3 có cấu trúc tinh thể được biểu diễn ở các hình 2.1a, 2.1b



a. Mạng tinh thể của GdF_3



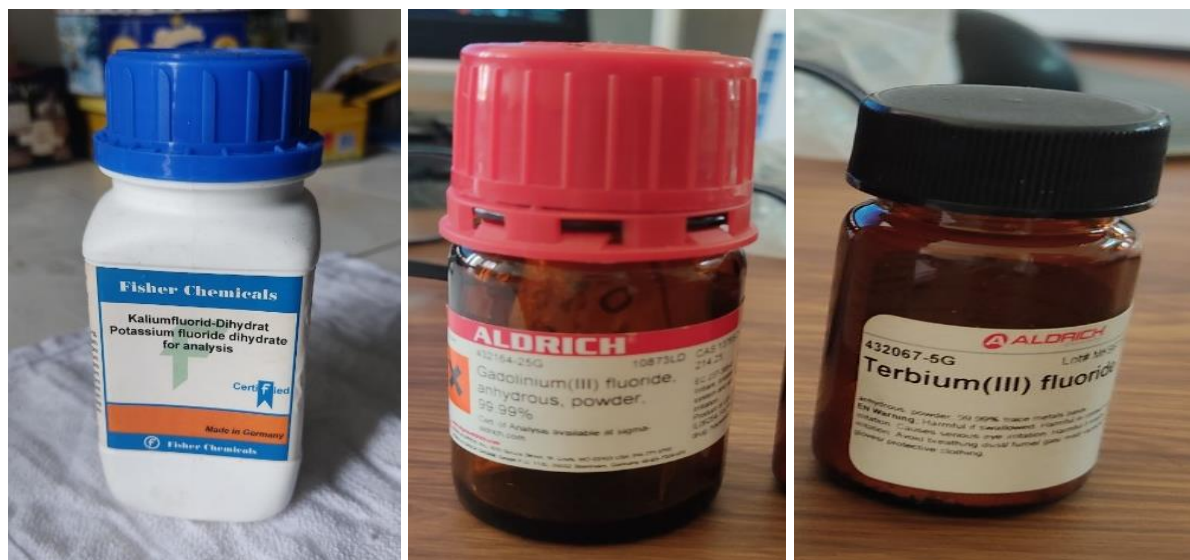
b. Mạng tinh thể của TbF_3

Hình 2.1. Cấu trúc mạng tinh thể GdF_3 và TbF_3

(Viện Khoa học Vật liệu Quốc Gia Nhật Bản)

- Đặc tính KF:
- + Nhiệt độ nóng chảy 858°C .
- + Tính hút ẩm cao trong không khí nên hóa chất tồn tại dưới dạng $\text{KF}\cdot 2\text{H}_2\text{O}$.

Các hóa chất được sử dụng trong thực nghiệm thể hiện Hình 2.2.



a. KF

b. GdF₃c. TbF₃

Hình 2.2. Các hóa chất được sử dụng trong thực nghiệm

2.1.2. Các thiết bị được sử dụng

Trong thí nghiệm này, chúng tôi sử dụng các thiết bị tại phòng thí nghiệm Vật lý ứng dụng – Viện Nghiên cứu và Ứng dụng công nghệ Nha Trang gồm có:

- Cân điện tử: Các nguyên liệu được cân bằng cân phân tích CP224S chuẩn nội, khả năng cân được 220g, độ đọc được 0,1mg do hãng OCE sản xuất với độ chính xác và độ tin cậy cao.

- Cối mã nã
- Thuyền teflon.
- Thuyền graphite tinh khiết.
- Lò nung kiểu đứng (nhiệt độ được điều khiển với độ chính xác 10°C).
- Hệ thống thổi khí trơ (Nitơ và Argon).

(Xem Hình 2.3).



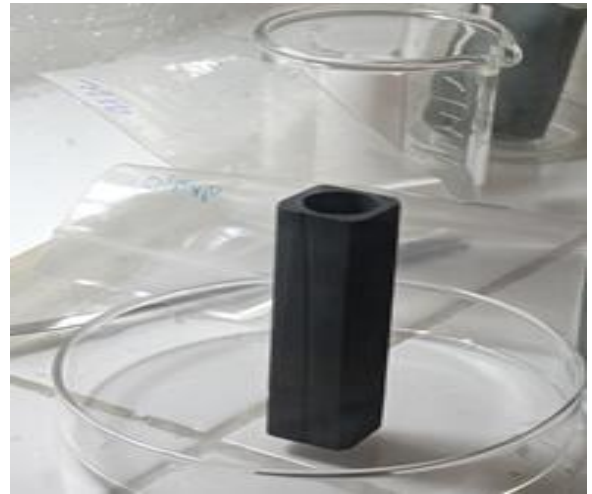
Cân điện tử



Cối nghiền bằng mã não



Thuyền bằng teflon



Thuyền bằng graphite



Hệ lò nung kiểu đứng



Hệ thổi khí tro

Hình 2.3 .Các thiết bị được sử dụng trong thực nghiệm
(Viện Nghiên cứu và Ứng dụng Công nghệ Nha Trang)

2.1.3. Hệ phát tia X

Chúng tôi đã sử dụng nguồn chiếu tia X trên hệ phát tia-X “RF-200EGM2” (hãng/nước/năm viện trợ: Rikaku/Nhật Bản/2017) [25] được đặt tại phòng thí nghiệm chuẩn liều bức xạ cấp 3 (cấp cơ sở) (TSDL) – Viện Nghiên cứu hạt nhân Đà Lạt (xem Hình 2.4), các đặc trưng của hệ phát tia X được trình bày trong Bảng 2.2.



a. Ống phát tia X “RF-200EGM2” b. Bàn điều khiển máy phát tia X

Hình 2.4. Hệ điều khiển máy phát tia X

(Viện Nghiên cứu Hạt nhân Đà Lạt)

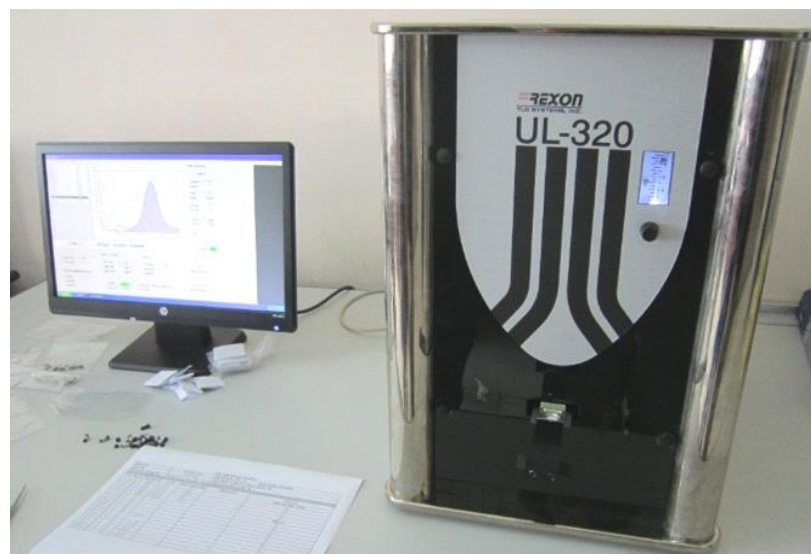
Bảng 2.2. Các thông số đặc trưng của hệ phát tia X “RF-200EGM2”

1	Điện cao áp	70 ~ 200 kV (bước thay đổi 2 kV)
2	Cường độ dòng điện	STD mode: 5 mA
		LOW mode ~ 4 mA
3	Cấu hình đầu bóng phát tia X	Ống tia X: Ceramic Kích thước tiêu điểm (danh định): 2,0 x 2,0 mm ²
4	Tấm lọc tia cố định	Aluminum 2mm + Beryllium 1mm
5	Kích thước	Đầu phát
		Bộ điều khiển
6	Trọng lượng	Đầu phát
		Bộ điều khiển

7	Nguồn cấp	1 pha - AC 190 – 240 V 50/60Hz
8	Công suất tiêu thụ	STD mode: 3,7 kVA
		LOW mode: 2,8 kVA
9	Chất cách điện của đầu phát	Khí SF6
	Phương pháp làm mát đầu phát	Tản nhiệt cưỡng bức

2.1.4. Máy đo phổ nhiệt phát quang

Hệ thống đọc liều nhiệt phát quang Rexion UL-320 (Hãng Rexion, USA) (xem Hình 2.5) bao gồm: một máy đọc tín hiệu nhiệt phát quang và một máy tính chạy hệ điều hành Windows XP có cài đặt phần mềm điều khiển, một màn hình VGA. Hệ đọc liều nhiệt phát quang Rexion UL-320 dùng để xác định liều bức xạ (β , γ , neutron và tia X) và được ứng dụng trong việc định liều bức xạ cá nhân. Hệ đọc liều UL-320 dùng cho các dạng vật liệu nhiệt phát quang như dạng bột, dạng viên nén, dạng que, Phần mềm kèm theo chạy trên Windows XP cung cấp khả năng kiểm soát, cài đặt nhiều thông số khác nhau đối với các chất nhiệt phát quang khác nhau và khả năng xử lý, quản lý tập tin lưu trữ. Phần mềm có thể sử dụng độc lập với hệ đọc liều Rexion UL-320, giúp việc phân tích số liệu đã đo chủ động hơn. Mẫu TLD được đo tự động, nhiệt độ trong quá trình đo được xác định bằng cảm biến hồng ngoại. Khi chu trình TLD hoàn thành, đường cong nhiệt phát quang, nhiệt độ, số đếm sẽ được hiển thị và lưu trữ trong các tập tin phân tích.



Hình 2.5. Hệ đọc liều Rexion UL-320
(Viện Nghiên cứu Hạt nhân Đà Lạt)

Các thông số kỹ thuật cơ bản của hệ đọc liều nhiệt phát quang Rexion UL-320 được trình bày trong Bảng 2.3.

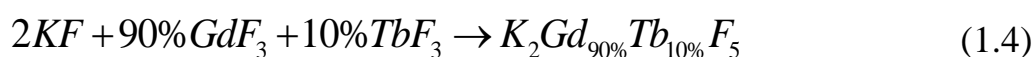
Bảng 2.3. Thông số kỹ thuật cơ bản của hệ đọc liều Rexion UL-320

TT	Đặc tính kỹ thuật	Thông số
1	Nguồn điện, dòng	230 VAC/50 Hz, 0,7 A
2	Vật liệu TLD	Chíp, que, đĩa, viên, bột
3	Thời gian chu trình TLD	0 – 3 phút. Có thể điều chỉnh trong khoảng 1 s.
4	Hệ thống nung chất nhiệt phát quang	Nung nóng trực tiếp với TTP 10 nút Độ chia nhiệt độ nhỏ nhất: 1°C Dải nhiệt độ: đến 500°C Kiểm soát nhiệt độ: 10 điểm Độ chính xác: 1°C
5	Báo cáo số liệu TLD	Đường cong nhiệt phát quang với độ chia 100 ms
6	Cao thế	0 – 2000 VDC
7	Điều kiện môi trường: Nhiệt độ Độ ẩm	5°C đến 40°C 5 – 95% không ngưng tụ
8	Lập trình chu kỳ nhiệt độ	Người dùng kiểm soát, có thể lập trình chu kỳ 10 điểm.

2.2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.2.1. Phương pháp chế tạo vật liệu

Trong đề tài, vật liệu K_2GdF_5 với nồng độ Tb pha tạp là 10% mol được tính toán theo phương trình như sau:



Từ phương trình phản ứng, có thể tính các khối lượng nguyên liệu thành phần theo các công thức sau:

- M (g) là khối lượng của vật liệu cần chế tạo.

+ Khối lượng của KF:

$$m_{KF} (g) = M * 2 * 57,998 / [(0,9)*330.230 + 0,1*331.920] \quad (1.5)$$

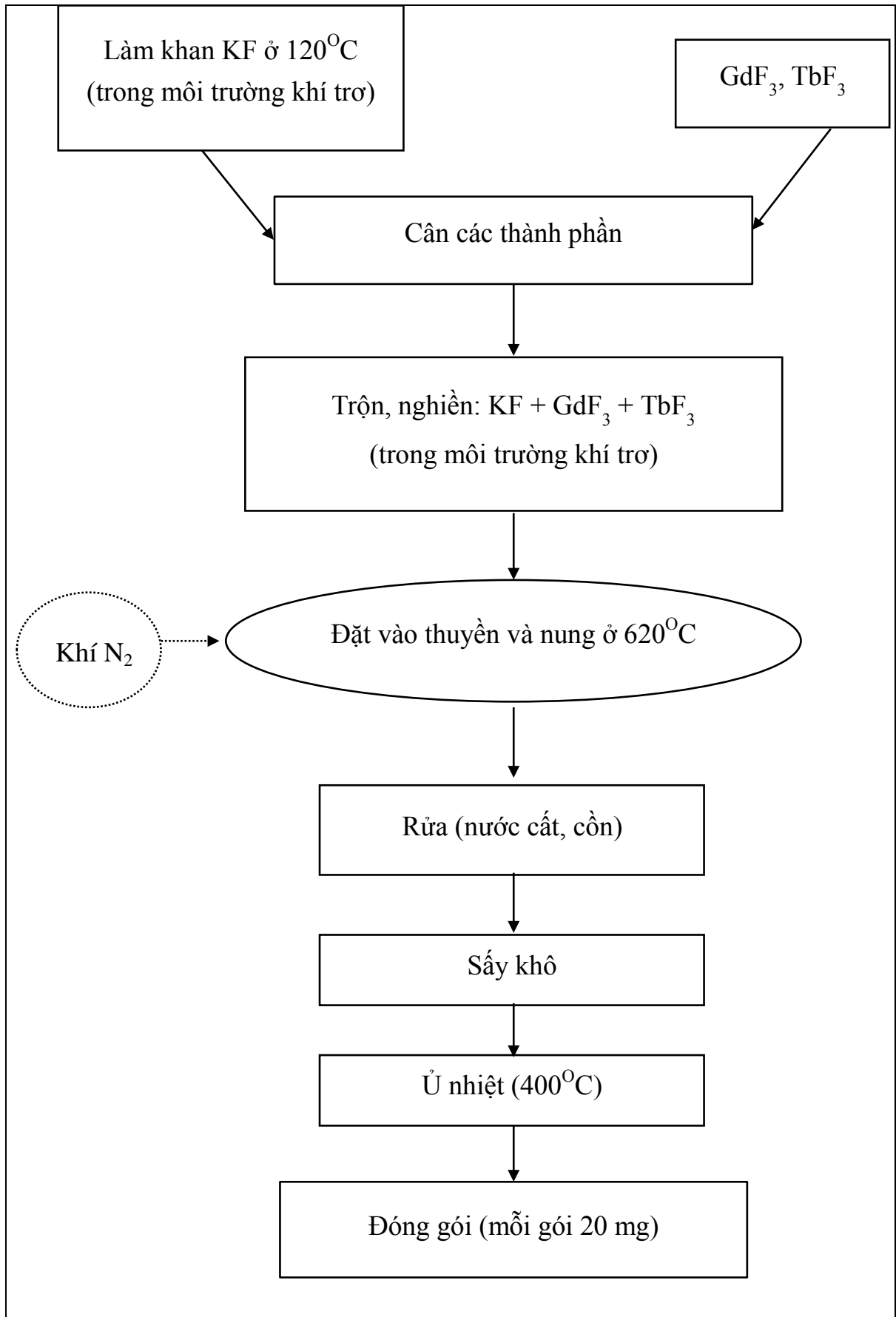
+ Khối lượng của GdF_3 :

$$m_{\text{GdF}_3} (\text{g}) = M * 0,9 * 214.234 / [(0,9)*330.230 + 0,1*331.920] \quad (1.6)$$

+ Khối lượng của TbF_3 :

$$m_{\text{TbF}_3} (\text{g}) = M * 0,1 * 215.924 / [(0,9)*330.230 + 0,1*331.920] \quad (1.7)$$

Vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}$ được chế tạo bằng phương pháp pha rắn theo quy trình Hình 2.6.



Hình 2.6. Sơ đồ chế tạo vật liệu K_2GdF_5 pha tạp ion Tb (10%)

Bước 1: Làm khan KF

Cho $\text{KF} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ được làm khan trong ống teflon trong lò nung với môi trường khí trơ. Quá trình làm khan KF được thực hiện từ nhiệt độ phòng lên đến 120°C trong thời gian 3 – 4 ngày. Quá trình này cần kiểm tra thường xuyên cho đến khi KF khan hoàn toàn (xem Hình 2.7).



Hình 2.7. Kiểm tra độ khan của $\text{KF} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

Bước 2: Tiến hành cân các nguyên liệu cần thiết

Khối lượng các hóa chất của KF khan, GdF_3 , TbF_3 sử dụng để chế tạo 4 mẻ vật liệu K_2GdF_5 pha tạp Tb nồng độ 10% tính toán theo phương trình (1.5), (1.6), (1.7) được trình bày theo Bảng 2.4.

Bảng 2.4. Khối lượng (gam) các hóa chất được sử dụng theo 4 mẻ

Tên	KF	GdF_3	TbF_3
Mẻ 1	0,9715	1,6133	0,1793
Mẻ 2	1,0438	1,7333	0,1926
Mẻ 3	1,1575	1,9221	0,2136
Mẻ 4	0,9874	1,6397	0,1822

Quá trình cân nguyên nguyên liệu được thể hiện trong Hình 2.8.



Hình 2.8. Cân nguyên liệu

Bước 3: Quá trình nghiền mẫu

Sau khi các nguyên liệu được cân theo đúng tỉ lệ như Bảng 2.4, tiến hành nghiền KF, GdF₃ và TbF₃ trong cối mã não. Quá trình nghiền được thực hiện hoàn toàn trong môi trường khí trơ. Thời gian thực hiện liên tục trong 120 - 180 phút (xem Hình 2.9). Bước này rất quan trọng để đảm bảo kích thước các hạt rất nhỏ, đồng đều nhau, các hỗn hợp khuếch tán tốt trong quá trình phản ứng pha rắn (xem Hình 2.10).



Hình 2.9. Thùng làm mẫu và nghiền mẫu



Hình 2.10. Mẫu sau khi nghiền

Bước 4: Nung mẫu

Đặt sản phẩm vào thuyền graphite tinh khiết và nung mẫu trong hệ lò nung kiểu đứng có cung cấp khí trơ liên tục ở nhiệt độ 620°C trong thời gian 5 ngày đến 6 ngày.

Sản phẩm sẽ được để nguội đến nhiệt độ phòng. Vật liệu K_2GdF_5 sau khi được tổng hợp có thể kết tinh dưới dạng viên nén, màu trắng (Xem Hình 2.11).



Hình 2.11. Mẫu sau khi nung

Bước 5: Rửa và sấy khô mẫu

Viên mẫu sẽ được rửa sạch với nước cất và cồn nhằm loại bỏ tạp chất bám bên ngoài trong quá trình chế tạo và thành phần KF (nếu còn).

Mẫu bột sẽ được sấy khô ở nhiệt độ 120°C khoảng 24 giờ. Mẫu sau khi sấy khô cần cân lại để đảm bảo khối lượng không bị hao hụt trong quá trình rửa, thành phần KF đảm bảo tham gia hết vào phản ứng và không bị tổn động sau quá trình nung (Xem Hình 2.12).



Hình 2.12. Mẫu bột sau khi sấy khô

Bước 6: Ủ nhiệt

Mẫu bột sau khi được sấy khô được ủ trong ống thủy tinh chịu nhiệt ở nhiệt độ 400°C trong thời gian 30 phút.

Bước 7: Đóng gói sản phẩm

Sau khi ủ nhiệt, mẫu sẽ được làm nguội ở nhiệt độ phòng. Mẫu sản phẩm có dạng bột, màu trắng, mịn và không hút ẩm trong môi trường không khí. Mẫu được lưu trong các ampul và chuyển đến cơ sở thực nghiệm chiếu xạ.

2.2.2. Các kỹ thuật xác định tính chất của sản phẩm

- Kỹ thuật nhiễu xạ tia X

Chúng tôi đã tiến hành gửi mẫu và đo phổ nhiễu xạ tia X đo trên máy X'Pert, sử dụng Cu-K α ở bước sóng $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$ tại trường Đại học quốc gia Changwon – Hàn Quốc.

Các mẫu K₂GdF₅ pha tạp Tb với nồng độ 10% được thực hiện ở chế độ góc là 2θ trong khoảng từ 15° đến 70° , bước $0,01^{\circ}$, nhiệt độ đo là 25°C .

Mục đích của quá trình xác định cấu trúc vật liệu và tính chỉ số.

- Chụp ảnh SEM

Các mẫu vật liệu được chụp ảnh SEM trên máy Tesco MIRA-II tại trường Đại học quốc gia Changwon – Hàn Quốc, điện áp hoạt động ở mức 15kV.

Mục đích xem xét hình thái bề mặt về độ đồng nhất, đồng đều bề mặt của vật liệu đã được chế tạo.

2.2.3. Nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) với liều bức xạ tia X

2.2.3.1. Các bước của quá trình chiếu liều bức xạ tia X

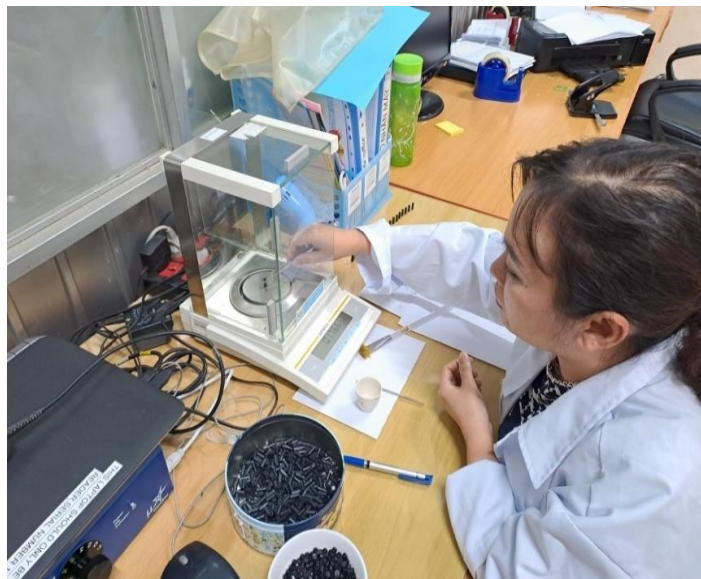
Đường cong nhiệt phát quang của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ chịu ảnh hưởng của nhiều yếu tố khác nhau, chẳng hạn như: Khối lượng mẫu chiếu, Thời gian nung, ủ mẫu chiếu, cường độ liều chiếu, điện cao áp, bố trí mẫu ...

Trong phạm vi đề tài, chúng tôi sử dụng nguồn bức xạ tia X để khảo sát thêm độ ổn định của các mẻ vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đã chế tạo. Mỗi mẫu sẽ được cân với khối lượng khoảng 20 mg và cùng một mức liều 10 mSv.

Các bước chiếu mẫu như sau:

* Bước 1: Cân mẫu chiếu $K_2GdF_5:Tb$ (10%)

Tiến hành cân mẫu vật liệu cần chiếu bằng cân phân tích điện tử 4 số BP121S chuẩn nội, max 120 g, độ đọc được $d = 0,1$ mg với độ chính xác, độ tin cậy cao. Quá trình cân mẫu được thể hiện trên Hình 2.13.



Hình 2.13. Quá trình cân mẫu

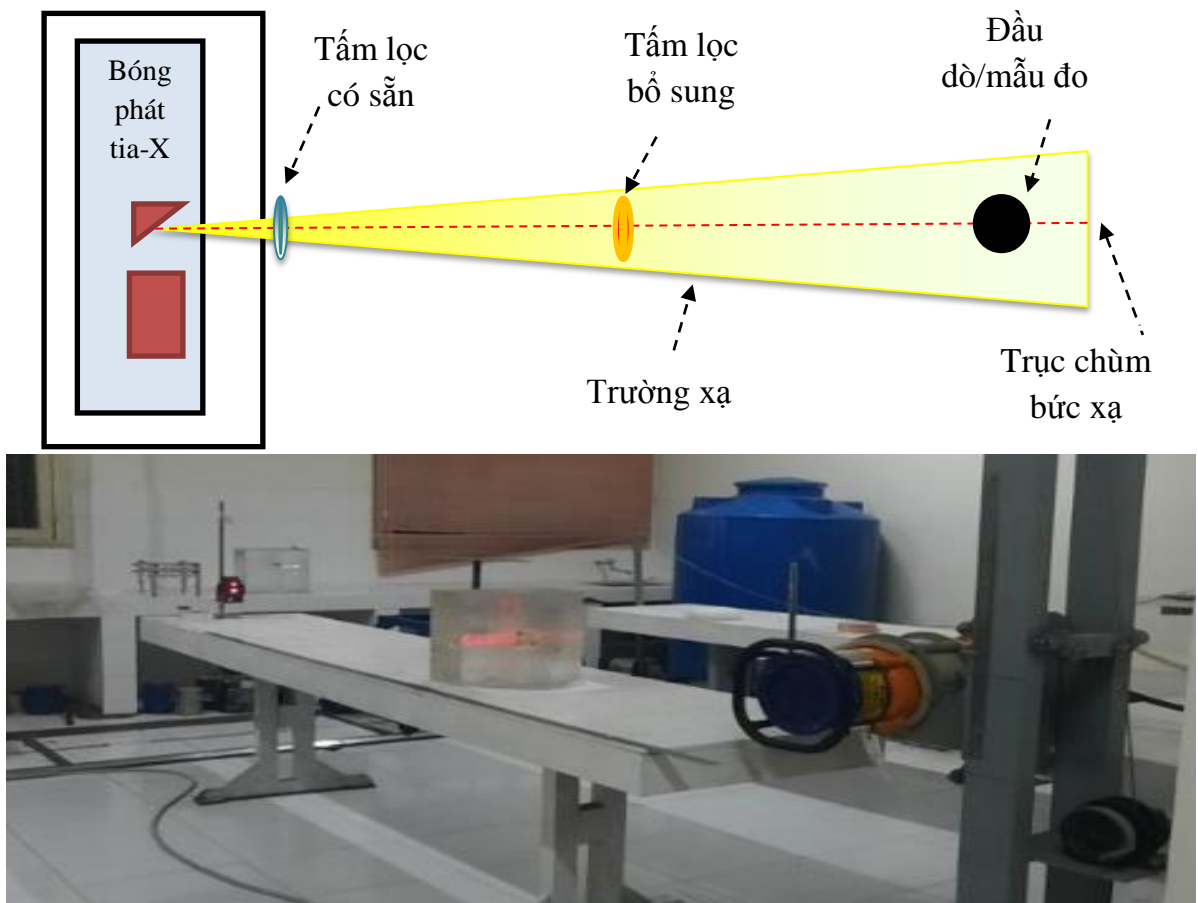
* Bước 2: Thực hiện quá trình chiếu chuẩn tia X

- Khối lượng chiếu khoảng ($20 \text{ mg} \pm 1 \text{ mg}$) đưa vào tuýp nhựa đen hình trụ có nắp (chiều cao ngoài $H = 14 \text{ mm}$; đường kính ngoài $\Phi = 5 \text{ mm}$; chiều cao trong $H = 8 \text{ mm}$; đường kính trong $\Phi = 2 \text{ mm}$) được đánh số theo thứ tự. Sau khi các tuýp mẫu được cân sẽ được chứa trong túi nilon để thực hiện chiếu chuẩn tia X, mỗi túi có khoảng 4-8 tuýp mẫu ($20 \text{ mg} \pm 1 \text{ mg}$) tùy vào số lượng mẫu dạng bột, xem Hình 2.14.



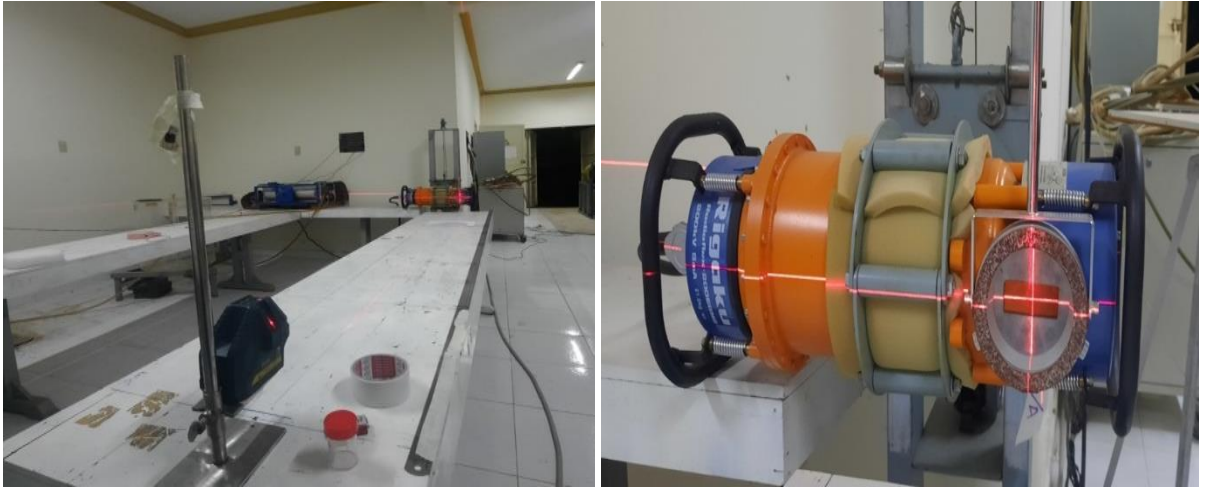
Hình 2.14. Mẫu vật trước khi chiếu

- Thực nghiệm chiếu mẫu bằng bức xạ tia X trên máy phát tia-X “RF-200EGM2” tại TSDL được bố trí theo sơ đồ thí nghiệm Hình 2.15.



Hình 2.15. Sơ đồ bố trí và hình ảnh thực nghiệm đo suất liều trên máy phát tia-X

- Thiết bị đầu phát tia X khi được chiếu tia Laser và mẫu chiếu được đặt trên phantom thể hiện Hình 2.16, 2.17.



Hình 2.16. Hệ định vị tâm trường chiếu bằng tia Laze



Hình 2.17. Mẫu vật đặt trên phantom

Điều chỉnh thiết bị phantom đặt ở vị trí chiếu chuẩn (trường liều) $L = 1$ m so với đầu máy phát tia X để chiếu mẫu. Xem Hình 2.18.



Hình 2.18. Điều chỉnh vị trí chiếu của phantom

2.2.3.2. Đo phổ nhiệt phát quang

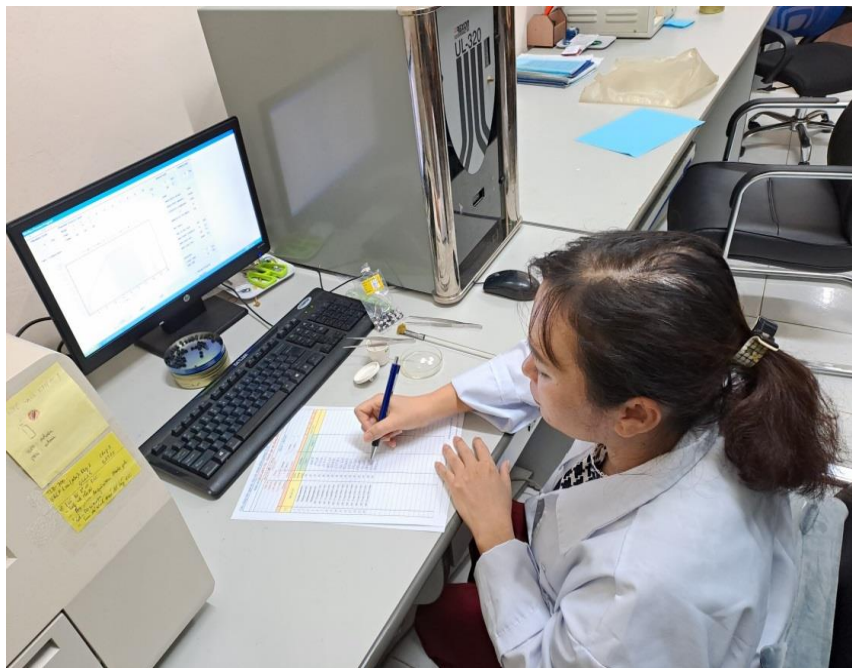
Để tiến hành khảo sát độ ổn định của vật liệu cần đánh giá mức độ biến thiên về đáp ứng của các liều kế cá nhân trong cùng một mẻ. Trước hết, chuẩn bị n liều kế trong cùng một mẻ đã khử tín hiệu về giá trị và lưu giữ chúng sau khi khử trong điều kiện thông thường. Tiếp theo, thực hiện chiếu n liều kế với cùng một giá trị liều chuẩn.

Khi tiến hành đo, chúng tôi dùng hai giá trị liều chiếu H_1 và H_2 . Trong đó, H_1 có giá trị bằng 10 lần giá trị ngưỡng phát hiện và bằng 0,5 mSv và H_2 có giá trị bằng 10 mSv của n mẫu được đọc trên hệ đọc liều nhiệt phát quang Rexion UL-320 và xác định giá trị X_{\max} , X_{\min} trong mỗi thí nghiệm.

Sau đó, áp dụng công thức (1.8) tính tỉ số đồng nhất của mẻ để làm tiêu chuẩn đánh giá:

$$H_x = \frac{X_{\max} - X_{\min}}{X_{\min}} \times 100\% \quad (1.8)$$

Quá trình đo phổ nhiệt phát quang của mẫu sau khi chiếu tia X được thể hiện trên Hình 2.19.



Hình 2.19. Đo phổ nhiệt phát quang của mẫu sau khi chiếu tia X

TIÊU KẾT CHƯƠNG 2

Chương 2 trình bày các nội dung:

Khối lượng các thành phần nguyên liệu và các bước trong quá trình chế tạo 4 mẻ chế tạo $K_2GdF_5:Tb$ pha tạp 10% theo phản ứng pha rắn trong môi trường khí trơ.

Đo phổ nhiễu xạ X-ray và chụp ảnh SEM mẫu K_2GdF_5 với các mẻ thu được.

Thực hiện chiếu xạ mẫu với nguồn bức xạ tia X và đo phổ nhiệt phát quang trên hệ đọc liều REXON UL-320 đối với các mẻ vật liệu khác nhau, xác định các thông số nhiệt phát quang của phổ nhiệt phát quang của vật liệu.

Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. KẾT QUẢ CHẾ TẠO MẪU

Một số yêu cầu trong quá trình chế tạo mẫu thu được:

- Khi thực hiện làm khan KF cần sử dụng ống nhựa teflon, vật liệu này có nhiệt độ nóng chảy 327°C , không bị ăn mòn, bền và không có phản ứng với hóa chất để làm khan KF trong môi trường khí trơ.

- Phản ứng pha rắn phải được thực hiện ở nhiệt độ khoảng 70% so với nhiệt độ nóng chảy của KF (858°C).

- Trong quá trình chế tạo vật liệu, phải liên tục cung cấp khí trơ cho lò nung kiểu đứng để đảm bảo không xảy ra phản ứng của KF với không khí và không phá hủy thuyền graphite ở nhiệt độ cao.

- Để đảm bảo độ ổn định và độ đồng đều của sản phẩm, các mẻ đều được nung ở nhiệt độ là 620°C trong thời gian 5 ngày.

Kết quả các mẫu K_2GdF_5 pha tạp Tb với nồng độ 10% thu hồi được có dạng bột trắng, khan, xốp, đồng nhất, không bị hút ẩm trong môi trường không khí. Điều đó cho thấy, các thành phần GdF_3 , TbF_3 và KF đã phản ứng hoàn toàn.

Khối lượng mẫu chế tạo trong một mẻ khoảng từ 2 gam đến 3 gam được thể hiện Bảng 3.1.

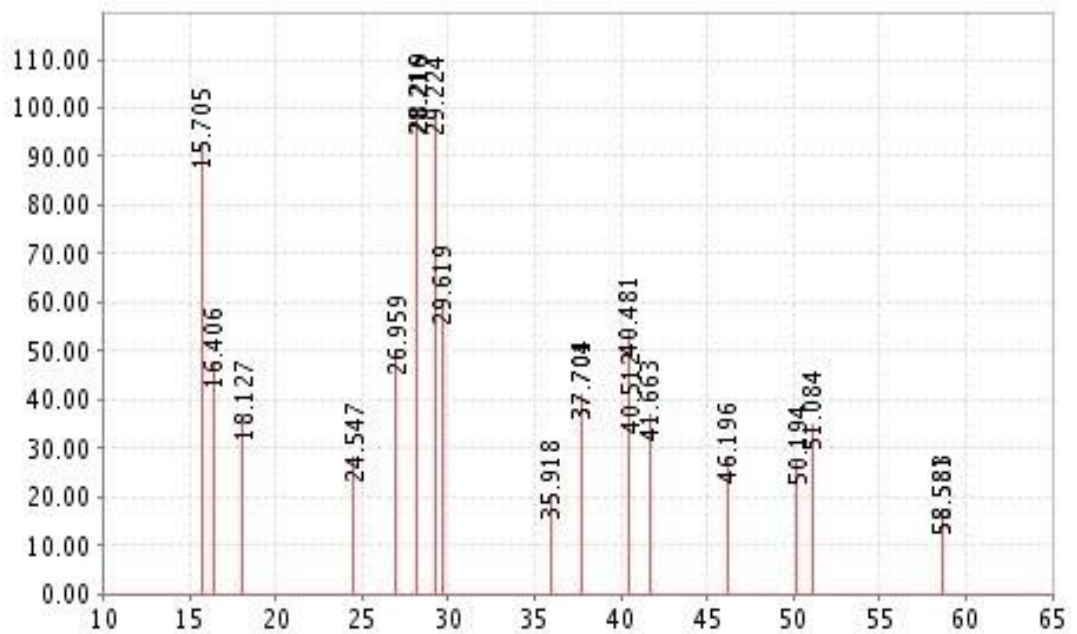
Bảng 3.1. Khối lượng mẫu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}$ đã chế tạo được qua 4 mẻ

Tên	Lý thuyết (gam)	Sau nung (gam)	Hao hụt sau nung (gam)	Sau rửa (gam)	Hao hụt sau rửa (gam)
Mẻ 1	2,7640	2,6276	0,1364	2,5086	0,1190
Mẻ 2	2,9697	2,8537	0,1160	2,7525	0,1012
Mẻ 3	3,2932	3,1671	0,1261	3,0167	0,1504
Mẻ 4	2,8092	2,6767	0,1325	2,5356	0,1411

Sau khi chế tạo xong, mẫu sẽ chia thành các mẻ được đóng gói vào một ống ampul đầy nắp kín và viết kí hiệu rõ ràng về thông tin mẫu đã chế tạo.

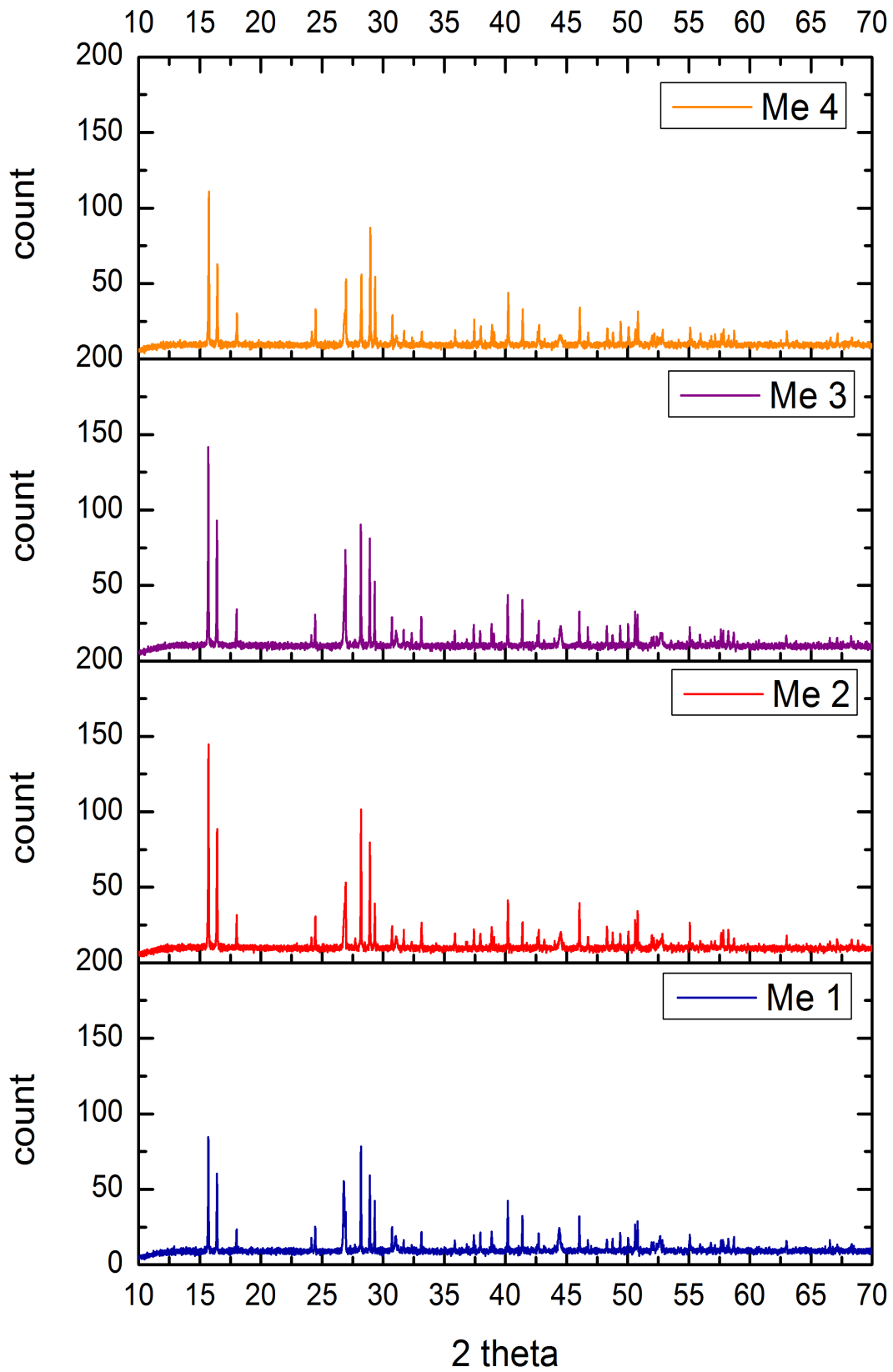
3.2. KẾT QUẢ XÁC ĐỊNH CẤU TRÚC CỦA VẬT LIỆU $K_2GdF_5:Tb$ BẰNG PHƯƠNG PHÁP NHIỄU XẠ TIA X

Giản đồ nhiễu xạ tia X của K_2GdF_5 theo mã số 77-1924-JCPDS được thể hiện trên Hình 3.1. Các vị trí đỉnh tương ứng các chỉ số Miller như ở Bảng 3.2.



Hình 3.1. Giản đồ nhiễu xạ tia X của hợp chất K_2GdF_5 trong tập tin cơ sở dữ liệu tiêu chuẩn JCPDS No. 77-1924 của Trung tâm Quốc tế dữ liệu nhiễu xạ

Kết quả phân tích phổ nhiễu xạ tia X của 4 mẻ được hiển thị trên các hình 3.2.



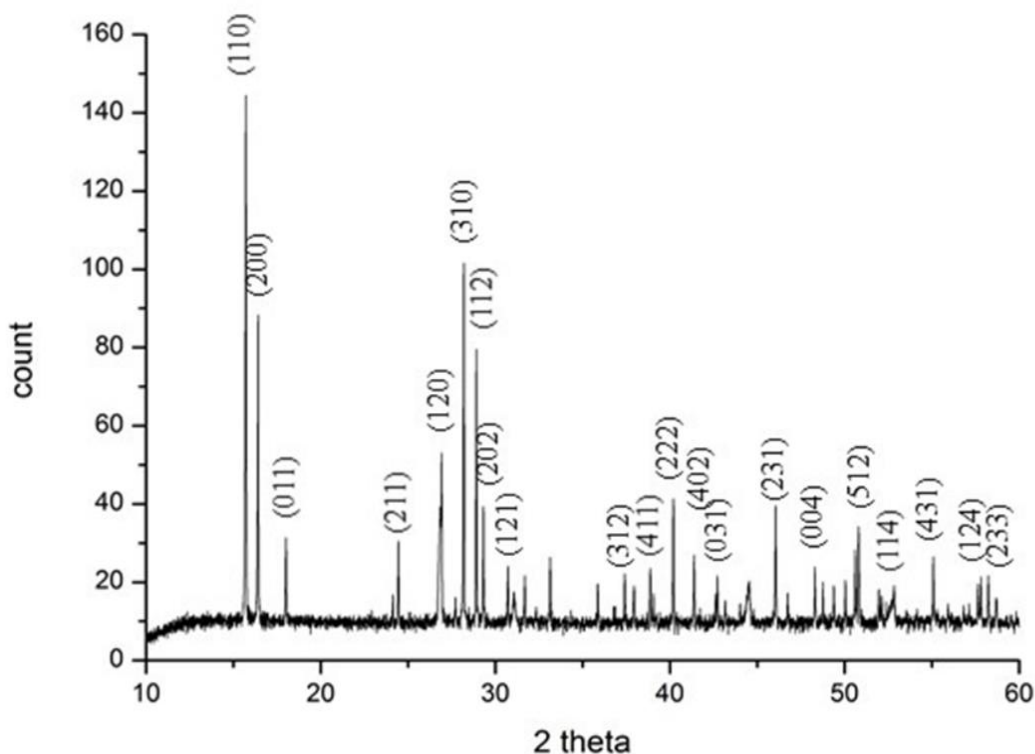
Hình 3.2. Phổ nhiễu xạ tia X của 4 mẫu

Bảng 3.2. Các chỉ số Miller tương ứng vị trí các đỉnh

2 θ (°)	Miller Indices			Cường độ (đvtd)	d - khoảng cách (nm)
	H	K	L		
15.61	1	1	0	100	0,5669
16.353	2	0	0	43	0,5413
18.023	0	1	1	33	0,4915
24.384	0	0	2	22	0,3646
24.433	2	1	1	34	0,3639
26.765	0	2	0	30	0,3327
28.097	3	1	0	79	0,3172
29.087	1	1	2	88	0,3067
29.505	2	0	2	67	0,3024
30.635	1	2	1	34	0,2915
37.91	4	1	1	17	0,2371
38.79	3	2	1	25	0,2319
40.26	2	2	2	58	0,2238
41.51	4	0	2	42	0,2173
41.517	1	3	0	41	0,2173
42.56	0	3	1	17	0,2122
45.887	2	3	1	31	0,1976
47.006	1	2	3	16	0,1931
49.981	0	0	4	22	0,1823
50.882	5	1	2	34	0,1793

Kết quả cho thấy rằng đa số các đỉnh nhiễu xạ của K_2GdF_5 pha tạp ion Tb^{3+} trùng khớp với các đỉnh nhiễu xạ và phù hợp với chỉ số Miller của K_2GdF_5 theo thẻ chuẩn với mã số 77-1924-JCPDS. Kết quả phổ nhiễu xạ tia

X của các mẻ 1, 2, 3, 4 có đa số đỉnh nhiễu xạ trùng khớp với phổ chuẩn. Kết quả được thể hiện trên Hình 3.3.



Hình 3.3. *Giản đồ nhiễu xạ tia X của $K_2GdF_5:Tb$ (10%) đã chế tạo*

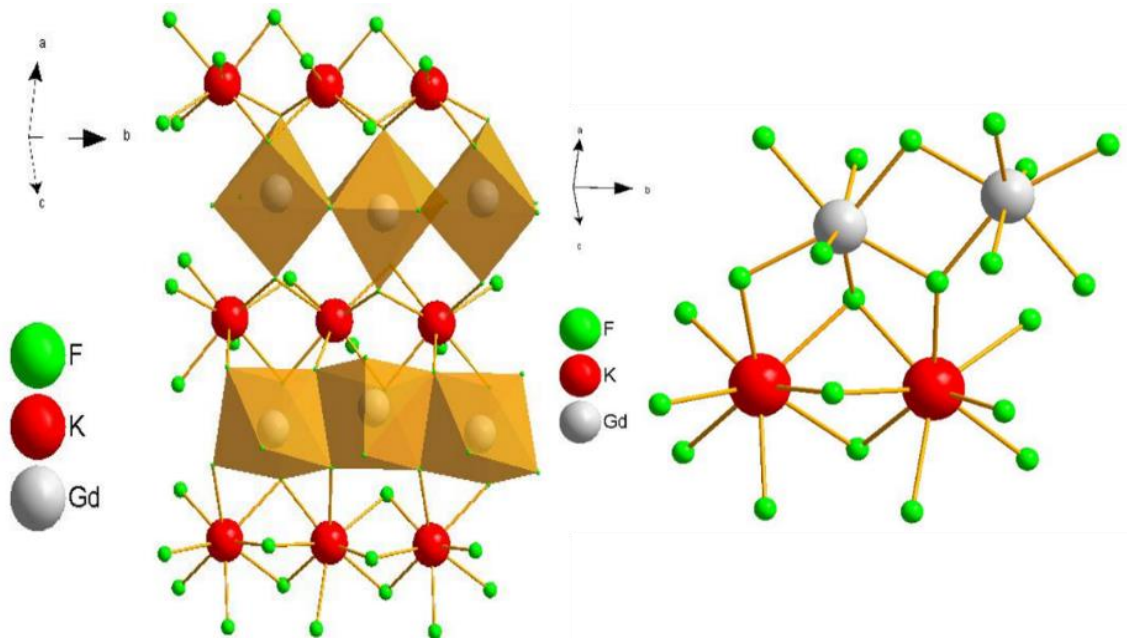
Sau khi đo và phân tích giản đồ nhận thấy, vật liệu có các đỉnh hầu như trùng với cấu trúc của tinh thể K_2GdF_5 . Kết quả các thông số, kích thước của ô cơ sở tinh thể sau khi đo và phân tích được của các mẻ chế tạo được thể hiện ở Bảng 3.3

Bảng 3.3. *Các thông số, kích thước của ô cơ sở tinh thể của 4 mẻ*

Tên	Hằng số mạng (Å^0)			Ghi chú
	a	b	c	
Mẻ 1	10,8217	7,3827	6,6305	
Mẻ 2	10,8212	7,3813	6,6292	
Mẻ 3	10,8223	7,3819	6,6304	
Mẻ 4	10,8222	7,3812	6,6295	

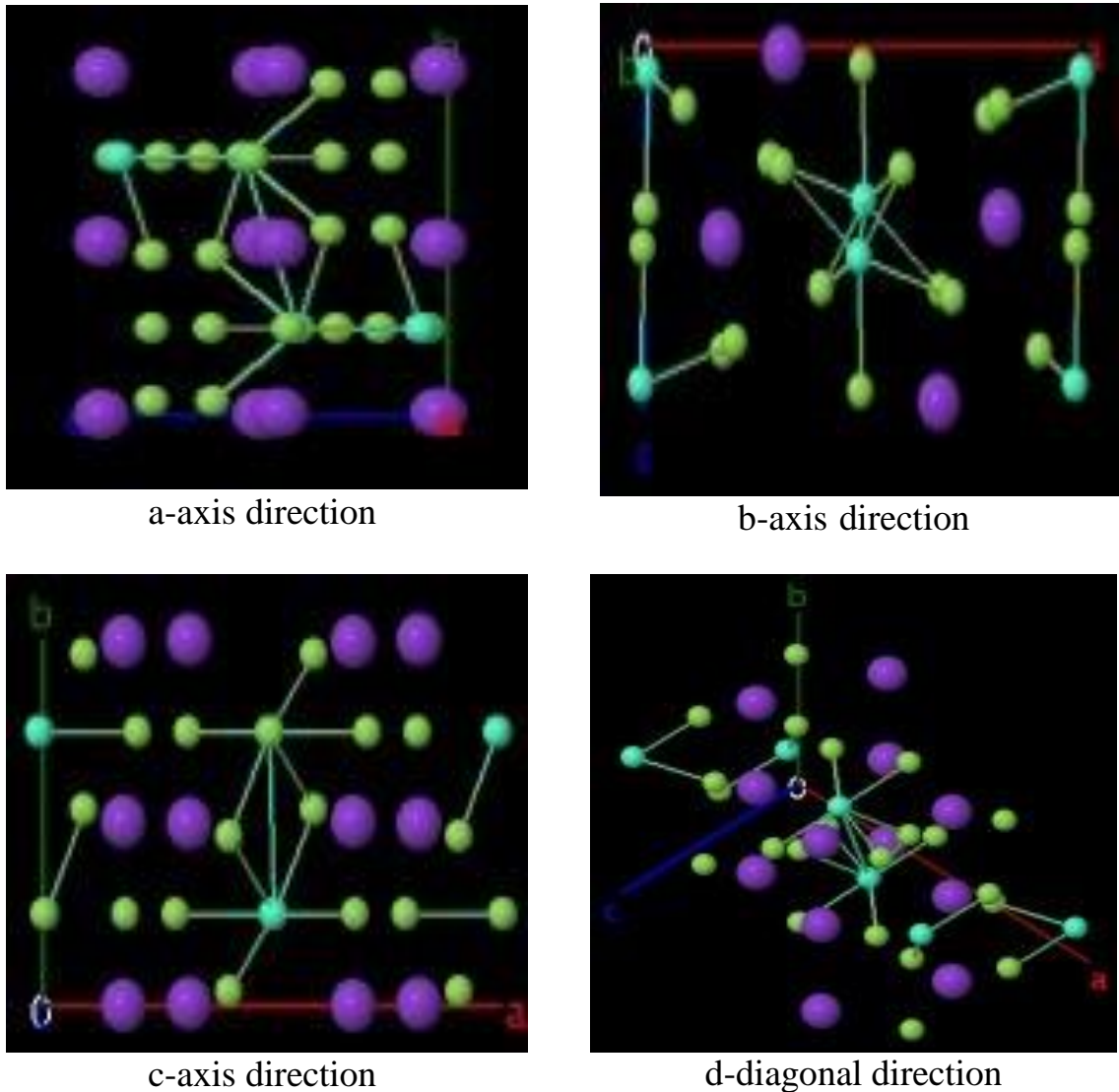
Từ phần mềm mô phỏng Diamond có thể nhận xét K_2GdF_5 đã được kết tinh trong cấu trúc trực giao với nhóm không gian của Pnam và cation K^+ được bao quanh bởi tám anion F^- . Mỗi cation Gd^{3+} đặt trong một vị trí đối xứng D_{2h} , được kết nối với bảy anion F và tạo thành một đa diện GdF_7 . Các

đa giác được nối với nhau bởi một cạnh chung và tạo thành một chuỗi song song với trục c [26], xem Hình 3.4.



Hình 3.4. Các liên kết không gian và cấu trúc mạng tinh thể K_2GdF_5
(Viện Khoa học Vật liệu Quốc gia Nhật Bản)

Khi so sánh cấu hình không gian của tinh thể K_2GdF_5 được mô phỏng với dữ liệu tiêu chuẩn của Fedorov [27] được công bố tại Viện Khoa học Vật liệu Quốc gia Nhật Bản - cấu trúc tinh thể và giản đồ XRD của của K_2GdF_5 và K_2TbF_5 thì gần như trùng nhau (xem Hình 3.5). Khi pha tạp với ion Tb^{3+} trong mạng chủ của K_2GdF_5 , thì các ion Gd^{3+} có thể thay thế bởi các ion Tb^{3+} vì bán kính ion của $Tb^{3+} \sim 109,5$ pm xấp xỉ với $Gd^{3+} \sim 110,7$ pm và cấu trúc mạng tinh thể của vật liệu K_2GdF_5 gần như không thay đổi.

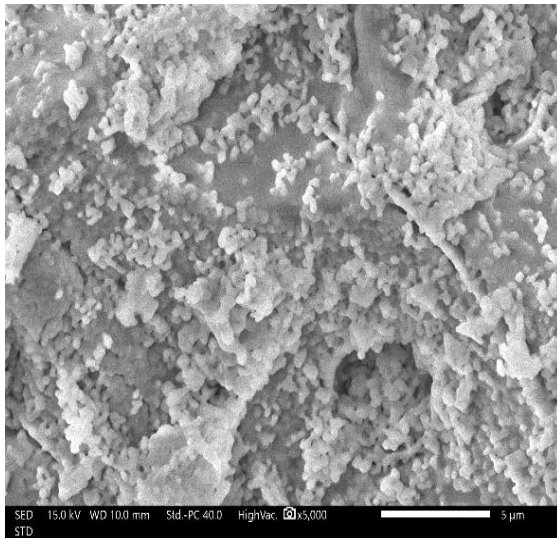


Hình 3.5. Cấu hình không gian của tinh thể K_2GdF_5
(Viện Khoa học Vật liệu Quốc gia Nhật Bản)

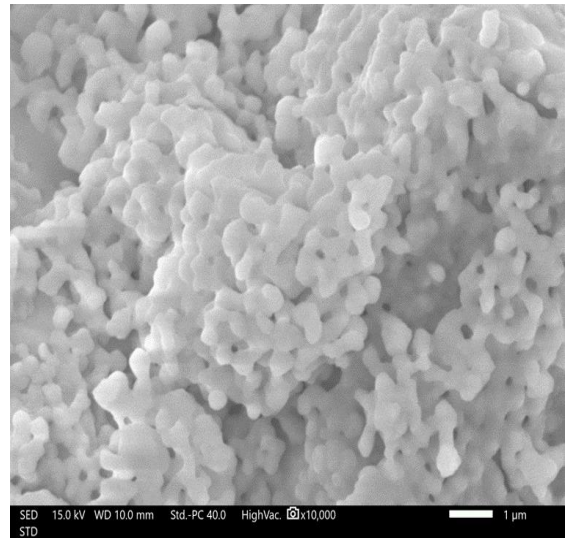
Như vậy, từ kết quả nhiễu xạ tia X của 4 mẻ $K_2GdF_5:Tb$ (10%) đã chế tạo theo một quy trình cho thấy rằng các mẻ có độ ổn định cao thể hiện qua các vị trí đỉnh nhiễu xạ khớp với đỉnh của thể chuẩn, đồng thời các hằng số mạng có độ chênh lệch thấp (dưới 5%).

3.3. KẾT QUẢ KHẢO SÁT ĐỘ ĐỒNG ĐỀU MẪU BẰNG CHỤP ẢNH SEM

Kết quả chụp ảnh SEM đại diện các mẻ vật liệu mẫu của bột $K_2GdF_5:Tb$ (10%) đã chế tạo được trình bày ở các hình 3.6, 3.7.

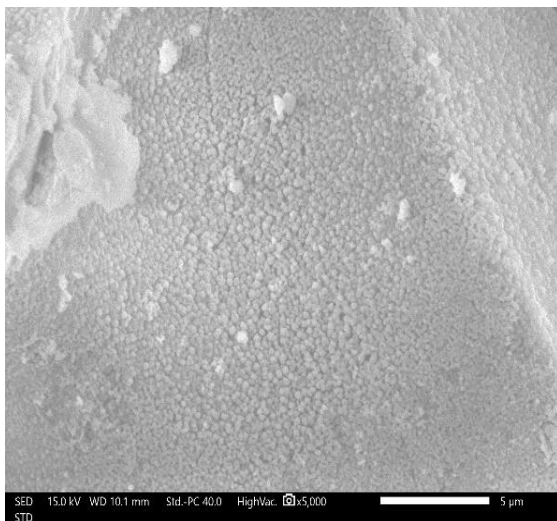


a. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 2 ở kích thước 5 μm

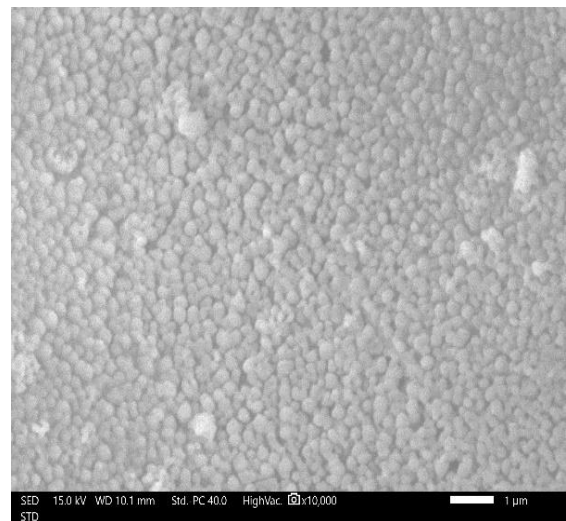


b. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 2 ở kích thước 1 μm

Hình 3.6. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 2 ở kích thước 5 μm và 1 μm



a. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 4 ở kích thước 5 μm



b. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 4 ở kích thước 1 μm

Hình 3.7. Ảnh SEM của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ mẻ 4 ở kích thước 5 μm và 1 μm

Qua hình ảnh SEM vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ nhận thấy cấu trúc bề mặt của vật liệu khá gồ ghề, đây là đặc trưng của phương pháp pha rắn vì vật liệu không bị nóng chảy. Về hình thái bề mặt của vật liệu có dạng đặc biệt như bề mặt xốp, các hạt đều đồng nhất, không chồng lên nhau, mật độ cao.

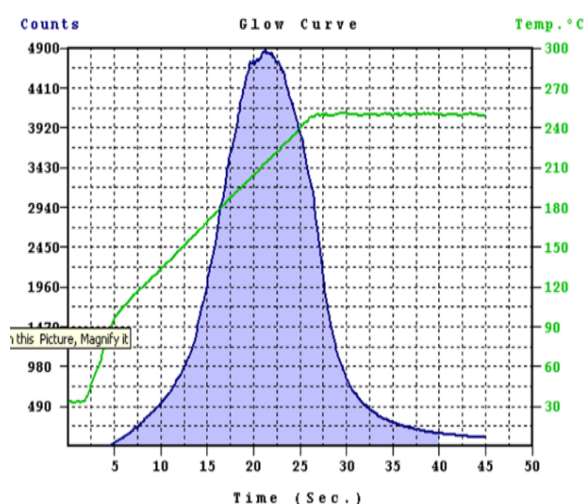
Như vậy, vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ có tính nhiệt phát quang mạnh, tính đồng nhất của các hạt trên bề mặt mẫu và phù hợp với dữ liệu thu được từ các mẻ XRD.

3.4. KẾT QUẢ KHẢO SÁT PHỔ NHIỆT PHÁT QUANG

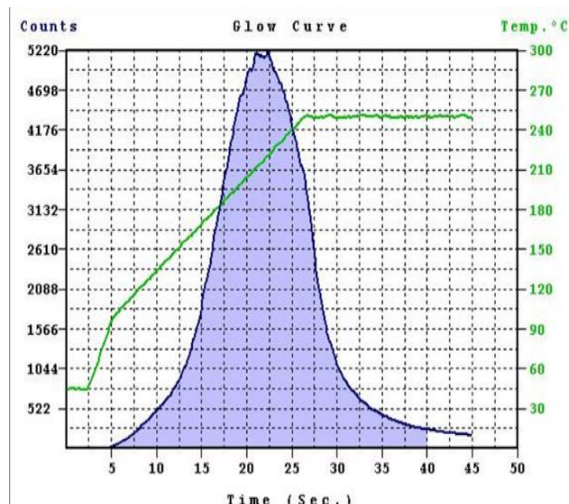
3.4.1. Kết quả đo phổ nhiệt phát quang

Máy phát bức xạ tia X sử dụng trong đề tài hoạt động ở chế độ cường độ dòng điện $I = 4 \text{ mA}$, điện cao áp 100 kV . Các mẫu vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}^{3+}$ được chiếu bức xạ tia X với liều chiếu 10 mSv .

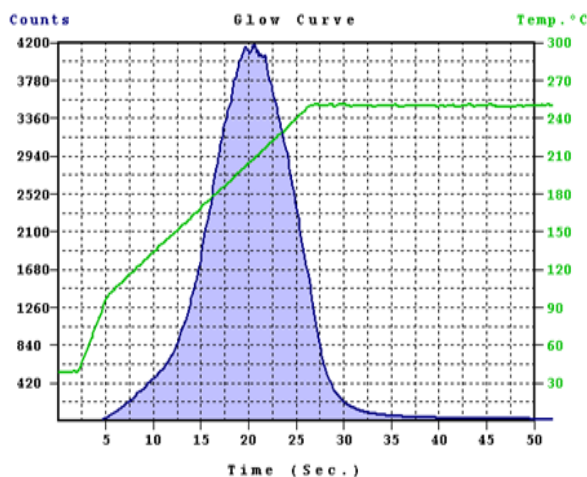
Kết quả các phổ nhiệt phát quang của vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}^{3+}$ khi chiếu xạ nguồn phát tia X được thể hiện trên Hình 3.8. (a. mẫu 1, b. mẫu 2, c. mẫu 3, d. mẫu 4).



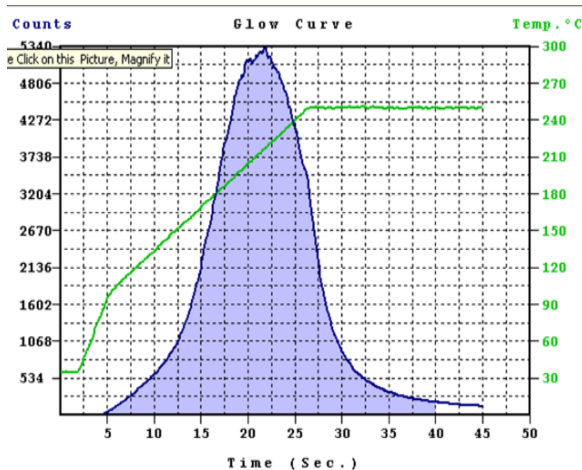
a) Phổ nhiệt phát quang của mẫu 1



b) Phổ nhiệt phát quang của mẫu 2



c) Phổ nhiệt phát quang của mẫu 3



d) Phổ nhiệt phát quang của mẫu 4

Hình 3.8. Phổ nhiệt phát quang của các mẫu vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}$

Hình 3.8 cho thấy rằng, hình dạng phổ nhiệt phát quang của các mẫu vật liệu đồng đều, sườn lên và sườn xuống của đường cong gần như cân đối, nhiệt độ đỉnh chính ở khoảng 210°C (đây là nhiệt độ thích hợp cho mục đích đo liều).

3.4.2. Kết quả số đếm (số xung tín hiệu) của các mẻ vật liệu

Kết quả số đếm (số xung tín hiệu) của 4 mẻ vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X sau khi đã trừ phông được trình bày ở các Bảng 3.4, 3.5, 3.6 và 3.7.

Bảng 3.4. Kết quả số đếm của mẻ 1 vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X

Mã số liệu kế	Khối lượng (mg)	Số đếm (counts)	Độ lệch chuẩn (counts)
MC-X-ray100kV-001	20	482.249	1.467
MC-X-ray100kV-002	20	496.444	4.328
MC-X-ray100kV-003	20	504.912	7.785
MC-X-ray100kV-004	20	494.851	3.678
MC-X-ray100kV-005	20	464.232	8.823
MC-X-ray100kV-006	20	464.234	8.822
MC-X-ray100kV-007	20	493.981	3.322
Trung bình	20	485.843	5.461 (1,12%)

Bảng 3.5. Kết quả số đếm của mẻ 2 vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X

Mã số liệu kế	Khối lượng (mg)	Số đếm (counts)	Độ lệch chuẩn (counts)
MC-X-ray100kV-001	20	462.249	8.495
MC-X-ray100kV-002	20	504.866	8.903
MC-X-ray100kV-003	20	469.236	5.643
MC-X-ray100kV-004	20	485.539	1.013
MC-X-ray100kV-005	20	470.525	5.117
MC-X-ray100kV-006	20	474.608	3.450
MC-X-ray100kV-007	20	514.381	12.788
Trung bình	20	483.058	6.487 (1,34%)

Bảng 3.6. Kết quả số đếm của mẻ 3 vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X

Mã số liệu kế	Khối lượng (mg)	Số đếm (counts)	Độ lệch chuẩn (counts)
MC-X-ray100kV-001	20	462.249	1.611
MC-X-ray100kV-002	20	453.105	5.344
MC-X-ray100kV-003	20	457.660	3.484
MC-X-ray100kV-004	20	476.390	4.162
MC-X-ray100kV-005	20	465.445	0.306
MC-X-ray100kV-006	20	482.718	6.745
MC-X-ray100kV-007	20	465.795	0.163
Trung bình	20	466.195	3.117 (0,67%)

Bảng 3.7. Kết quả số đếm của mẻ 4 vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) khi chiếu liều bức xạ tia X

Mã số liệu kế	Khối lượng (mg)	Số đếm (counts)	Độ lệch chuẩn (counts)
MC-X-ray100kV-001	20	462.514	3.501
MC-X-ray100kV-002	20	490.957	5.075
MC-X-ray100kV-003	20	444.787	8.846
MC-X-ray100kV-004	21	504.286	9.094
MC-X-ray100kV-005	20	499.404	7.622
MC-X-ray100kV-006	20	443.294	9.296
MC-X-ray100kV-007	20	466.258	2.372
MC-X-ray100kV-008	20	478.253	1.245
MC-X-ray100kV-009	20	497.913	7.172
MC-X-ray100kV-010	20	462.210	3.593
MC-X-ray100kV-011	20	454.266	5.988
MC-X-ray100kV-012	20	485.361	3.388
Trung bình	20	474.125	5.599 (1,18%)

Dựa vào kết quả các bảng số liệu trên, nhận thấy độ lệch chuẩn số đếm của mẫu trong các mẻ chế tạo dưới 5%. Điều này chứng tỏ, các nguyên liệu trong các mẻ chế tạo có sự phân bố đồng đều với nhau.

3.5. KẾT QUẢ KHẢO SÁT TÍNH ỔN ĐỊNH CỦA CÁC MẺ VẬT LIỆU CHẾ TẠO

3.5.1. Kết quả đánh giá độ ổn định của các mẻ qua quy trình chế tạo

Trong quá trình nung và rửa, mỗi giai đoạn của quy trình chế tạo vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ 10% bằng phản ứng pha rắn, khi so sánh khối lượng của các nguyên liệu sử dụng với kết quả mẫu sau khi chế tạo cho thấy khối lượng gần chính xác và theo quan sát mẫu thành phẩm không bị ẩm khi để ngoài môi trường không khí. Kết quả khối lượng vật liệu được chế tạo hầu hết có độ hao hụt khối lượng mẫu dưới 5% được biểu diễn trong bảng 3.8. Điều này cho thấy, phản ứng xảy ra giữa các nguyên liệu là hoàn toàn và KF không bị bay hơi.

Bảng 3.8. Độ hao hụt khối lượng mẫu $K_2GdF_5:Tb$ đã chế tạo so với tính toán

Tên	Hao hụt sau nung (%)	Hao hụt sau rửa (%)
Mẻ 1	4,93	4,52
Mẻ 2	3,91	3,54
Mẻ 3	3,82	4,74
Mẻ 4	4,71	5,27
Trung bình	4,34	4,52

Như vậy, giá trị độ hao hụt trung bình về khối lượng mẫu của từng giai đoạn xử lý mẫu theo quy trình chế tạo dưới 5%. Kết quả phân tích thành phần vật liệu bằng kỹ thuật nhiễu xạ tia X cho thấy rằng giá trị sai lệch các hàng số mạng giữa các mẻ dưới 5% (Bảng 3.3).

3.5.2. Kết quả đánh giá độ ổn định của các mẻ sau khi chiếu bức xạ tia X

- Kết quả đánh giá độ đồng nhất khi thực hiện chiếu mẫu vật liệu với 7 mẫu bằng thiết bị đọc tín hiệu phổ nhiệt phát quang với các thông số mức liều $H_1 = 0,5$ mSv, cường độ dòng điện 4mA được thể hiện trong Bảng 3.9.

Bảng 3.9. Kết quả khảo sát độ đồng đều của mẫu với $H_1 = 0,5 \text{ mSv}$ với 7 mẫu

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H1 (counts)	Ghi chú
1	Sample-TLD-001	0,5	188.306	
2	Sample-TLD-002	0,5	183.720	
3	Sample-TLD-003	0,5	205.686	
4	Sample-TLD-004	0,5	201.587	
5	Sample-TLD-005	0,5	189.114	
6	Sample-TLD-006	0,5	201.336	
7	Sample-TLD-007	0,5	189.012	
	X_{max}		205.686	
	X_{min}		183.720	
	H_X		12,0%	

Theo I.E.C 1066:1991 [28] hoặc ISO 21909:2005(E) (QT C1.1) [29] thì H_X không vượt quá 30% là thỏa mãn điều kiện các mẻ đồng nhất. H_X tìm được có giá trị 12,0% hoàn toàn thỏa mãn, điều đó có nghĩa là mẻ liệu kế được chế tạo đồng nhất với nhau.

Kết quả đánh giá độ đồng nhất khi thực hiện chiếu mẫu vật liệu với 7 mẫu bằng thiết bị đọc tín hiệu phổ nhiệt phát quang với các thông số mức liều $H_2 = 10 \text{ mSv}$, cường độ dòng điện 4 mA, điện cao áp 100 kV, thời gian 20,36 s được trình bày trong Bảng 3.10.

Bảng 3.10. Kết quả khảo sát độ đồng đều của mẫu với $H_2 = 10 \text{ mSv}$ với 7 mẫu (mẻ 1)

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H ₂ (counts)	Ghi chú
1	Sample-TLD-001	10	482.249	
2	Sample-TLD-002	10	496.444	
3	Sample-TLD-003	10	504.912	
4	Sample-TLD-004	10	494.851	
5	Sample-TLD-005	10	464.232	
6	Sample-TLD-006	10	464.234	

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H ₂ (counts)	Ghi chú
7	Sample-TLD-007	10	493.981	
	X_{max}		504.912	
	X_{min}		464.232	
	H_X		8,8%	

Theo I.E.C 1066:1991 hoặc ISO 21909:2005(E) (QT C1.1) thì H_X tìm được có giá trị 8,8% hoàn toàn thỏa mãn, điều đó có nghĩa là mẻ liều kế được chế tạo đồng nhất với nhau.

Kết quả đánh giá độ đồng nhất khi thực hiện chiếu mẫu vật liệu với 7 mẫu bằng thiết bị đọc tín hiệu phổ nhiệt phát quang với các thông số mức liều H₂ = 10 mSv, cường độ dòng điện 4 mA, điện cao áp 100 kV, thời gian 20,96 s được trình bày trong Bảng 3.11.

Bảng 3.11. Kết quả khảo sát độ đồng đều của mẫu với H₂ = 10 mSv với 7 mẫu (mẻ 2)

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H ₂ (counts)	Ghi chú
1	Sample-TLD-001	10	462.249	
2	Sample-TLD-002	10	504.866	
3	Sample-TLD-003	10	469.236	
4	Sample-TLD-004	10	485.539	
5	Sample-TLD-005	10	470.525	
6	Sample-TLD-006	10	474.608	
7	Sample-TLD-007	10	514.381	
	X_{max}		514.381	
	X_{min}		462.249	
	H_X		11,3%	

Theo I.E.C 1066:1991 hoặc ISO 21909:2005(E) (QT C1.1) thì H_X tìm được có giá trị 11,3% hoàn toàn thỏa mãn, điều đó có nghĩa là mẻ liều kế được chế tạo đồng nhất với nhau.

Kết quả đánh giá độ đồng nhất khi thực hiện chiếu mẫu vật liệu với 7 mẫu bằng thiết bị đọc tín hiệu phổ nhiệt phát quang với các thông số mức liều $H_2 = 10$ mSv, cường độ dòng điện 4 mA, điện cao áp 100 kV, thời gian 20,16 s được trình bày trong Bảng 3.12.

Bảng 3.12. Kết quả khảo sát độ đồng đều của mẫu với $H_2 = 10$ mSv với 7 mẫu (mê 3)

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H_2 (counts)	Ghi chú
1	Sample-TLD-001	10	462.249	
2	Sample-TLD-002	10	453.105	
3	Sample-TLD-003	10	457.660	
4	Sample-TLD-004	10	476.390	
5	Sample-TLD-005	10	465.445	
6	Sample-TLD-006	10	482.718	
7	Sample-TLD-007	10	465.795	
	X_{max}		482.718	
	X_{min}		453.105	
	H_X		6,5%	

Theo I.E.C 1066:1991 hoặc ISO 21909:2005(E) (QT C1.1) thì H_X tìm được có giá trị 6,5% hoàn toàn thỏa mãn, điều đó có nghĩa là mê liệu kế được chế tạo đồng nhất với nhau.

Kết quả đánh giá độ đồng nhất khi thực hiện chiếu mẫu vật liệu với 12 mẫu bằng thiết bị đọc tín hiệu phổ nhiệt phát quang với các thông số mức liều $H_2 = 10$ mSv, cường độ dòng điện 4 mA, điện cao áp 100 kV, thời gian 20,67 s được trình bày trong Bảng 3.13.

Bảng 3.13. Kết quả khảo sát độ đồng đều của mẫu với $H_2 = 10$ mSv với 12 mẫu (mê 4)

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H_2 (counts)	Ghi chú
1	Sample-TLD-001	10	462.514	
2	Sample-TLD-002	10	490.957	
3	Sample-TLD-003	10	444.787	

Stt	Mã số liệu kế	Liều chiếu (mSv)	Số đếm H ₂ (counts)	Ghi chú
4	Sample-TLD-004	10	504.286	
5	Sample-TLD-005	10	499.404	
6	Sample-TLD-006	10	443.294	
7	Sample-TLD-007	10	466.258	
8	Sample-TLD-008	10	478.253	
9	Sample-TLD-009	10	497.913	
10	Sample-TLD-010	10	462.210	
11	Sample-TLD-011	10	454.266	
12	Sample-TLD-012	10	485.361	
	X_{max}		504.286	
	X_{min}		443.294	
	H_X		13,8%	

Theo I.E.C 1066:1991 hoặc ISO 21909:2005 (QT C1.1) thì H_X tìm được có giá trị 13,8% hoàn toàn thỏa mãn, điều đó có nghĩa là mẻ liệu kế được chế tạo đồng nhất với nhau.

Qua các lần chiếu mẫu vào vật liệu và đo liều phổ nhiệt phát quang đều nhận thấy nhiệt độ đỉnh phổ nhiệt phát quang của các mẻ $K_2GdF_5:Tb^{3+}$ (10%) thích hợp cho mục đích đo liều, phổ nhiệt phát quang của 4 mẻ chế tạo cân đối, đồng dạng và độ đồng đều giữa các liệu kế thỏa mãn các yêu cầu cần thiết.

Như vậy, có thể kết luận quy trình chế tạo các mẻ vật liệu theo phương pháp phản ứng pha rắn bằng nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang của vật liệu với bức xạ tia X có tính ổn định khá cao, có thể ứng dụng làm liệu kế trong đo liều bức xạ hạt nhân trong tương lai.

TIÊU KẾT CHƯƠNG 3

Quá trình nghiên cứu thu được những kết quả sau:

Đã chế tạo 4 mẻ vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ nồng độ 10% bằng phương pháp pha rắn trong môi trường khí trơ. Các sản phẩm đều có dạng bột trắng, hạt đồng nhất, có độ xốp, không bị hút ẩm khi để trong môi trường không khí.

Các kết quả xác định cấu trúc vật liệu bằng phương pháp kỹ thuật XRD chứng tỏ quy trình chế tạo có độ ổn định và kết quả hình thái bề mặt bằng ảnh SEM đã xác định đúng cấu trúc tinh thể của K_2GdF_5 có độ đồng nhất bề mặt, không chồng lên nhau, mật độ cao nên diện tích tiếp xúc lớn.

Kết quả đo phổ nhiệt phát quang vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ pha tạp 10% từ hệ đọc liều nhiệt phát quang REXON UL-320 khi chiếu bức xạ tia X.

Các kết quả nghiên cứu trên đã cho thấy quy trình chế tạo các mẻ vật liệu K_2GdF_5 pha tạp Tb^{3+} theo phương pháp phản ứng pha rắn đã đạt được sự ổn định, từ đó vật liệu này có thể ứng dụng làm liều kế để định liều bức xạ trong tương lai.

KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ

1. KẾT LUẬN

Luận văn “*Khảo sát tính ổn định của quy trình chế tạo $K_2GdF_5:Tb$ bằng nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang của vật liệu với bức xạ hạt nhân*” đã thu được những kết quả chính như sau:

- Chế tạo thành công các mẻ vật liệu K_2GdF_5 pha tạp ion Tb 10% theo phương pháp phản ứng pha rắn.

- Mẫu K_2GdF_5 pha tạp Tb với nồng độ 10 % thu hồi được có dạng bột trắng, khan, đồng nhất, xốp, không bị hút ẩm trong môi trường không khí.

- Đã xác định cấu trúc tinh thể của vật liệu bằng nhiễu xạ tia X.

- Kết quả ảnh SEM cho thấy bề mặt của vật liệu rất xốp, có diện tích tiếp xúc cao với các rãnh trên bề mặt và có tính đồng nhất của các hạt trên bề mặt mẫu.

- Độ hao hụt trung bình về khối lượng mẫu của từng giai đoạn xử lý mẫu theo quy trình chế tạo dưới 5%.

- Các nghiên cứu trên đo liều tia X chứng tỏ độ đáp ứng nhiệt phát quang của vật liệu đã được ổn định.

Các kết quả nghiên cứu của đề tài cho thấy tính ổn định của quy trình chế tạo mẫu bằng phương pháp phản ứng pha rắn qua các kết quả xác định cấu trúc, hình thái bề mặt của vật liệu, đáp ứng liều đối với bức xạ tia X .

2. KIẾN NGHỊ

Sau khi đánh giá độ ổn định của quy trình chế tạo vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (10%) dạng bột bằng nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang của vật liệu với bức xạ hạt nhân có thể định hướng ứng dụng làm liều kế trong đo liều bức xạ hạt nhân trong tương lai.

DANH MỤC TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Hà Xuân Vinh, Đoàn Phan Thảo Tiên, Nguyễn Chí Thắng, Phạm Xuân Hải, Lương Ngọc Hạnh, 2014, Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt phát quang của K_2GdF_5 pha tạp đất hiếm ứng dụng trong đo liều neutron, *Tuyển tập báo cáo Hội Nghị “Những tiến bộ trong Vật lý Kỹ Thuật và Ứng dụng”*, tr.311–316, ISBN 978-604-913-232-2.
2. Ha Xuan Vinh, Nguyen Chi Thang, Doan Phan Thao Tien and Tran Hoan Vu, 2018, Study on thermoluminescence properties of $K_2GdF_5:Tb^{3+}$, *Vietnam Journal of Science and Technology*, VAST, 56 (1A), pp.102-109.
3. H.X.Vinh, V.Hao, T.V.Tuat, D.P.T.Tien, V.T.T.HA, B.T.Huy, 2011, *Thermoluminescent properties of $Li_2B_4O_7$* . Nha Trang, Workshop, pp. 226–233.
4. Huynh Ky Hanh, Nicholas M. Khaidukov, Vladimir N. Makhov, Vu Xuan Quang, Nguyen Trong Thanh and Vu Phi Tuyen, 2010, Thermoluminescence properties of isostructural K_2YF_5 and K_2GdF_5 crystals doped with Tb^{3+} in response to α , β and X-ray irradiation, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B (NIM B)*, 268, pp.3344–3350, doi: 10.1016/j.nimb.2010.06.141.
5. V.X.Quang, V.P.Tuyen, N.T.Thanh, P.V.Do , V.T.T.Ha, D.T.Anh V.N. Khaidukov M.N.M, 2011, *Tb^{3+}/Sm^{3+} codoped K_2YF_5 and K_2GdF_5 crystals: optical properties and energy transfer mechanisms*, Nha Trang, Workshop, pp. 47-52.
6. Edna Carla da Silva, Nicholas M. Khaidukov, Joelan A. L. Santos, Eudice C. Vilela and Luiz Oliveira de Faria, 2009, Investigation of the thermoluminescent response of $K_2GdF_5:Dy^{3+}$ crystals to photon radiation and neutron fields, *2009 International Nuclear Atlantic Conference – INAC 2009*, Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 27 to October 2, 2009, ISBN 978-85-99141-03-8.
7. Xuan Vinh. Ha, Chi Thang. Nguyen and Phan Thao Tien. Doan, 2014, Preparation of Tb^{3+} -doped K_2GdF_5 used to neutron dosimetry, *Nuclear Science and Technology*, VAES-VINATOM, 4(3), pp. 30-37, ISSN 1810-5408.

8. Hà Xuân Vinh và cộng sự, 2014, Nghiên cứu chế tạo liều kế từ vật liệu K_2YF_5 và K_2GdY_5 , *Tạp chí Khoa học và Công nghệ*, Đại học Duy Tân, ISSN 1859–4905, 4(13), Tr.77-84.
9. Claudio Furetta, 2003, Handbook of Thermoluminescence, *Rome University “La Sapienza” – Italy, World Scientific Publishing Co.Pte. Ltd*, Singapore 596224, pp 424-444, ISBN 9812382402.
10. Bùi Thế Huy, 2009, *Nghiên cứu điều chế và tính chất quang của vật liệu nhiệt phát quang có chứa Lithium để sử dụng trong thiết bị đo liều*, Luận án tiến sĩ Vật lý, VAST.
11. Vũ Thị Thái Hà, 2010, *Nghiên cứu chế tạo, tính chất và khả năng ứng dụng vật liệu nhiệt phát quang họ LiF*, Luận án tiến sĩ Vật lý, Viện Khoa học Vật liệu, VAST.
12. Bùi Thế Huy, Vũ Xuân Quang, Bùi Minh Lý, Ngô Văn Tâm, Phan Tiến Dũng, 2007, Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt huỳnh quang vật liệu $LiF:Mg,Cu,P$, *Tuyển tập báo cáo Hội nghị “Vật lý chất rắn toàn quốc lần thứ V”*, TP. Vũng Tàu, Tr.1019-1022.
13. Phan Van Do, 2020, Investigation on the thermoluminescence properties of $KGdF_4:Sm^{3+}$ polycrystalline, *VNU Journal of Science: Mathematics - Physics*, 56(4), pp.29-34, <https://js.vnu.edu.vn/MaP>.
14. Hà Xuân Vinh, Đoàn Phan Thảo Tiên, Nguyễn Chí Thắng, Phạm Xuân Hải, Lương Ngọc Hạnh, 2014, Xác định thành phần bức xạ bằng phương pháp nhiệt phát quang trên vật liệu K_2YF_5 và K_2GdF_5 pha tạp Tb^{3+} , *Tuyển tập báo cáo Hội nghị “Những tiến bộ trong Vật lý Kỹ thuật và Ứng dụng”*, Tr.410–415, ISBN 978-604-913-232-2.
15. Hà Xuân Vinh và cộng sự, 2018, Nghiên cứu và ứng dụng thử nghiệm liều kế K_2GdF_5 pha tạp Tb trong lĩnh vực đo liều bức xạ hạt nhân đáp ứng với các tia gamma, beta, neutron, *Báo cáo tổng kết đề tài nghiên cứu cấp Bộ*, VAST.
16. Doan Phan Thao Tien, Tran Thi Thanh Lam, Tran Dinh Hung, Nguyen Thi Minh Nguyet and Ha Xuan Vinh, 2019, Study on energy transfer properties of Gd-Tb ion pairs in $K_2GdF_5:Tb$ for use in neutron dosimetry, *Report in the 6th International Conference on Engineering Physics and its Application*, 22-26 October 2019, Thai Nguyen city, Vietnam.

17. Ha Xuan Vinh, Doan Phan Thao Tien, Nguyen Chi Thang, 2014, Preparation of Tb³⁺-doped K₂GdF₅ used to neutron dosimetry, *Nuclear Science and Technology*, VAES-VINATOM, 4(4), pp.30-37, ISSN 1810-5408.
18. Ha Xuan Vinh, Doan Phan Thao Tien, Nguyen Chi Thang, 2014, Effects of Gamma and Beta Radiations to Dosimeters Fabricated from K₂YF₅ and K₂GdF₅, *Nuclear Science and Technology*, VAES-VINATOM, 4(4), pp. 47-54, ISSN 1810–5408.
19. Võ Thị Thu Hà, 2003, *Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt phát quang của vật liệu Li₂B₄O₇:Cu ứng dụng trong đo liều xạ trị*, Luận án thạc sĩ, Viện Vật Lý.
20. https://vi.wikipedia.org/wiki/H%E1%BA%A1t_alpha, 04/10/2022.
21. https://vi.wikipedia.org/wiki/Tia_gamma, 04/10/2022.
22. https://vi.wikipedia.org/wiki/Tia_X, 24/11/2022.
23. <https://visco.com.vn/danh-muc/inspection-methods/x-ray-diffraction/>, 06/12/2022.
24. <https://visco.com.vn/2021/08/17/quang-pho-nhieu-xa-tia-x-xrd-va-ung-dung/>, 24/12/2022.
25. Rigaku Corporation, 2007, *Portable industrial X-ray inspection apparatus radioflex – 300EGM2/250EGM2/200EGM2 instruction manual*, Japan.
26. James O. Eckert, et al., *Energetics of formation of KF-GdF₃ binary-intermediate compounds*, *Thermochimica Acta*, 1996, 286, 233-243.
27. P. P. Fedorov, Systems of Alkali and Rare-Earth Metal Fluorides, *Russian Journal of Inorganic Chemistry*, 44(11), 1999, pp. 1703–1727.
28. IEC 1066: 1991, Thermoluminescence dosimetry system for personal and environmental monitoring, *International Electrotechnical Commission (IEC)*.
29. ISO 21909:2005, Passive personal neutron doseimeters – Performance and test requirements, *International Organization for standardization (ISO)*.