



انجمن حفاظت در برابر اشعه ایران

مقاله کنفرانسی



مجله سنجش و ایمنی پرتو، جلد ۱۱، شماره ۴، زمستان (ویژه نامه) ۱۴۰۱، صفحه ۵۱-۵۶
ششمین کنفرانس سنجش و ایمنی پرتوهای یون ساز و غیر یون ساز (مرداد ماه ۱۴۰۰)
تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۰/۰۷/۱۰، تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۱/۰۵/۰۹

بررسی تجربی خطی بودن پاسخ یک کالریمتر جدید بر پایه نانوکامپوزیت پلی استایرن/نانولوله کربنی چنددیواره در ناحیه پرتو فرآوری

آرمن مسیبی^۱، شهریار ملکی^{۱*}، عباس رحیمی^۲، فرهود ضیائی^۳ و نسرین شیخ^۳

^۱ پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، کرج، ایران.

^۲ دفتر حفاظت در برابر اشعه، مرکز نظام ایمنی هسته‌ای کشور، سازمان انرژی اتمی، تهران، ایران.

^۳ پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران، ایران.

* کرج، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده کاربرد پرتوها، کدپستی: ۳۱۴۸۶۴۳۱۱۱

پست الکترونیکی: smaleki@aeoi.org.ir

چکیده

در پژوهش‌های پیشین نوع جدیدی از دزیمترهای تابشی گاما بر پایه ماده نانوکامپوزیت پلیمر/نانوساختارهای کربنی توسط نویسندگان ارائه و هم‌چنین ویژگی‌های دزیمتری برای این نوع دزیمتر بررسی شده است. در این کار تجربی، مقاومت الکتریکی نمونه نانوکامپوزیت پلی‌استایرن/نانولوله کربنی چنددیواره MWCNT-PS wt% ۲۸/۰ در محدوده دمایی ۲۵-۷۵ °C اندازه‌گیری شد. اساس کار یک کالریمتر بر مبنای افزایش دمای حجم حساس در اثر پرتو دهی است. نتایج نشان داد که با افزایش دما، مقاومت الکتریکی نانوکامپوزیت به صورت خطی افزایش یافته و با توجه به روابط کالریمتری می‌تواند به عنوان یک کالریمتر در ناحیه پرتو فرآوری برای اندازه‌گیری دز جذبی تا حدود ۵۰ kGy مورد استفاده قرار گیرد.

کلیدواژگان: نانوکامپوزیت پلی‌استایرن/نانولوله کربنی، کالریمتری، مقاومت الکتریکی، پرتو فرآوری.

۱. مقدمه

برابر پرتو، از جمله کالاهای فناوری بالا محسوب شده و وارداتی است، انتخاب روشی نوین و جایگزین ترمیستور، هدف اساسی این پژوهش را تشکیل می‌دهد. بدین منظور، در این پژوهش تجربی، یک نانوکامپوزیت پلیمر-نانولوله کربن به منظور بررسی ویژگی‌های کالریمتری در ناحیه پرتو فرآوری معرفی گردید. نانوکامپوزیت‌های پلیمری دارای کاربردهای گسترده‌ای در سیستم‌های آنتی‌استاتیک، سلول‌های خورشیدی،

کالریمترها از جمله دزیمترهای استاندارد مرجعی هستند که در مراکز پرتو فرآوری مجهز به شتاب‌دهنده الکترون به منظور کالیبره نمودن میزان دز جذبی در کالاهای تحت تابش مورد استفاده قرار می‌گیرند. اصولاً یک سامانه کالریمتری شامل قطعات ویژه‌ای مانند ترمیستور، قلب، ژاکت و عایق گرمایی است. با توجه به این‌که وجود ترمیستور در قلب کالریمتر علاوه بر ایجاد اختلال در پاسخ، به دلیل نوع ویژه مقاوم در

پژوهش‌های بسیاری روی ساخت، بهبود، مدل‌سازی و شناسایی چنین ساختارهایی متمرکز شد [۹].

در این پژوهش تجربی از پلیمر پلی استایرن (PS) به عنوان ماتریس و از MWCNTs به عنوان ماده پُرکننده به منظور ساخت نمونه نانو کامپوزیت PS/MWCNT استفاده گردید. در پژوهش‌های پیشین، اثر پرتو گاما بر خواص الکتریکی دزیمترهای مبتنی بر ماده نانو کامپوزیت پلیمر/نانوساختارهای کربنی بررسی گردید [۱۸-۱۰].

در این‌جا به بیان سابقه‌ای از تحقیقات انجام شده در زمینه کاربرد کامپوزیت‌های پلیمری در سیستم‌های آشکارسازی و دزیمتری پرتوهای یون‌ساز پرداخته می‌شود.

نویسندگان در کارهای پیشین ایده جدیدی مبنی بر استفاده از نانو کامپوزیت پلیمر/نانو لوله کربن جهت ساخت یک کالریمتر در سطح پرتو فرآوری را مطرح نمودند [۱۹، ۲۰]. در سال ۲۰۰۷، ویژگی‌های دزیمتری فیلم ضخیم پلی-وینیلیدین فلوراید (PVDF)^(۳) با ضخامت ۲۳ μm و پُرکننده‌های^۶ کربن تحت پرتو دهی گاما و در ولتاژ ۳۷ توسط کروس تینسکا و همکاران بررسی شد [۲۱]. در سال ۲۰۰۸ جیازی ما و همکاران با استفاده از نظریه گذر^۷، اثرات مربوط به طول و چگالی نانولوله‌های کربن بر هدایت الکتریکی یک حس‌گر تابشی را بررسی نمودند [۲۲]. ایده اولیه طراحی و ساخت یک سیستم آشکارسازی و دزیمتری مبتنی بر نانو کامپوزیت پلیمری از یک اختراع ثبت شده توسط انریکو باررا و همکاران حاصل شد [۲۳]، که در آن اندرکنش پرتو با نانو کامپوزیت پلیمر/نانولوله کربن عاملدار شده^۸ بررسی شد. پس از آن امکان استفاده از یک نانو کامپوزیت متشکل از زمینه پلیمری و نانولوله‌های کربنی، به عنوان دزیمتر پرتو توسط ملکی و همکاران مورد بررسی قرار گرفت [۵]. از

حفاظت‌سازی امواج الکترومغناطیس و پرتوهای یون‌ساز، سنسورهای پیزوالکتریک، سنسورهای پرتویی و دزیمتری هستند [۵-۱]. نانو کامپوزیت‌های پلیمری به خاطر سبکی، دارا بودن چگالی معادل بافت بدن، سهولت در فرآوری و هزینه نسبتاً پایین، قابلیت به‌کارگیری در سیستم‌های آشکارسازی و دزیمتری را دارا هستند.

مهمترین نانولوله‌های کربن به دو گروه تقسیم می‌شوند: نانولوله‌های کربنی تک دیواره^۱ (SWCNT) و نانولوله‌های کربنی چند دیواره^۲ (MWCNT) نانولوله‌های کربنی چند دیواره را می‌توان به صورت مجموعه‌ای از نانولوله‌های کربنی تک دیواره متحدالمحور با قطرهای متفاوت در نظر گرفت. طول و قطر این ساختارها و البته خواص آن با نانولوله‌های کربنی تک دیواره تفاوت بسیاری دارد. فرآیند رسانش الکترون در نانو کامپوزیت پلیمر-نانو ساختار کربنی اصولاً از سه طریق صورت می‌گیرد: رسانش ذاتی نانو ساختار کربنی نظیر نانولوله‌های کربنی یا نانو صفحات گرافن، انتقال از طریق تماس مستقیم نانو ساختارهای کربنی با یکدیگر، رسانندگی از طریق تونل‌زنی کوانتومی^۳ یا ترابرد جهشی^۴ الکترون‌ها بین نانو ذراتی که به اندازه کافی به هم نزدیکند [۶]. نانولوله‌های کربنی تک دیواره دارای بیشترین هدایت الکتریکی در میان سایر الیاف کربنی شناخته شده هستند و تحرک پذیری الکتریکی^۵ آنها در دمای اتاق بیش از $10^6 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ است [۷]. نانولوله‌های کربنی قادرند تا چگالی جریان الکتریکی بالغ بر 10^9 A/cm^2 را از خود عبور دهند [۸]. پس از سال ۱۹۹۴ که آجایان و همکاران برای اولین بار MWCNT را به عنوان مواد پُرکننده در بستر پلیمری معرفی نمودند و پس از آن

¹ Single-Walled Carbon Nanotubes

² Multi-Walled Carbon Nanotubes

³ Quantum Tunneling

⁴ Hopping

⁵ Mobility

⁶ Fillers

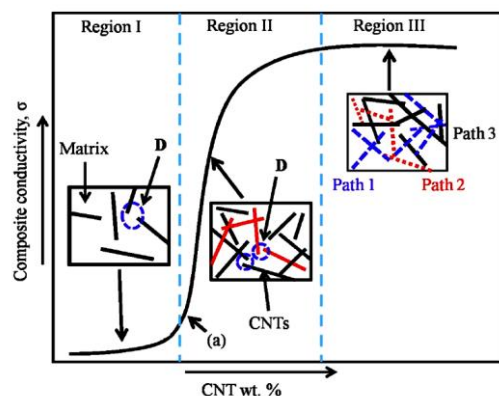
⁷ Percolation Theory

⁸ Functionalized

۲. مواد و روش‌ها

پلی استایرن (PS) با گرید ۱۵۴۰ و چگالی 1.05 g/cm^3 از پتروشیمی تبریز به صورت گرانول تهیه شد. پودر MWCNT با درصد خلوص بیش از ۹۹٪ از شرکت US-Nano خریداری شده، تولوئن و دی کلرومتان به عنوان حلال‌های مناسب برای پلی استایرن و پخش‌کننده خوب برای نانولوله کربن از شرکت Merck آلمان تهیه شد و همچنین به منظور ساخت الکتروود روی فیلم نازک، چسب نقره از شرکت امریکایی Chemtronics تهیه شد. به منظور ساخت نمونه نانوکامپوزیت PS/MWCNT از روش محلولی استفاده شد. در این پژوهش از نمونه MWCNT-PS $0.28 \text{ wt}\%$ به منظور بررسی خطی بودن پاسخ کالریترم بهره‌گیری شد. به این علت که در تحقیقات پیشین نشان داده شد که بیشترین حساسیت پذیری دزیمترها نانوکامپوزیت در ناحیه نزدیک به EPT است [۴]. بدین منظور در ابتدا پودر MWCNT در محلول دی‌کلرومتان ریخته شده، با استفاده از دستگاه همزن اولتراسونیک مدل UP200H به مدت دو ساعت فراصوت‌دهی شد. همزمان در ظرف دیگری ماده PS به مدت 30 min در محلول تولوئن، به کمک همزن مغناطیسی همزده شد، تا این‌که کاملاً در محلول حل گردید. در نهایت این دو ظرف با یکدیگر مخلوط شده، مجدداً به مدت 30 min همزده شد. دما در حین هم زدن محلول نهایی به حدود 90°C رسید. پس از افزایش نسبی مقدار ویسکوزیته محلول حاوی PS/MWCNT، محلول نهایی در قالب‌های سیلیکونی ریخته شد تا حلال کاملاً خارج شده، پس از آن تحت پرس داغ^۲ قرار گرفتند. پس از آماده‌سازی نمونه‌ها، درون آون در محدوده دمایی $25-75^\circ\text{C}$ یعنی از دمای اتاق تا دمای نزدیک به نرم‌شدگی پلیمر قرار داده شدند و به طور همزمان مقاومت الکتریکی نمونه‌ها با استفاده از اهم‌متر اندازه‌گیری شد.

آن‌جا که پاسخ دزیمتر نانوکامپوزیت به صورت تغییر جریان الکتریکی عبوری از نمونه در حین پرتودهی است، لذا مسئله‌ی هدایت الکتریکی در طراحی و ساخت این گونه دزیمترها بسیار با اهمیت است. حضور نانولوله‌های کربنی در زمینه‌ی پلیمری، موجب شده تا هدایت الکتریکی نانوکامپوزیت افزایش یابد. مواد نانو ساختار کربنی نظیر نانولوله کربن یا گرافن به ترتیب به خاطر دارا بودن نسبت‌های طول به قطر و سطح به حجم بالا، مطابق شکل ۱ پس از ترکیب با پلیمرها در کسر وزنی خاصی موسوم به آستانه گذر الکتریکی^۱ (EPT)، از طریق تشکیل نانوکامپوزیت پلیمر/نانوساختار کربنی، منجر به افزایش چند مرتبه‌ای هدایت الکتریکی پلیمرها می‌شوند. در ناحیه اول درصد وزنی CNT بسیار پایین بوده و در نتیجه هدایت الکتریکی کل نانوکامپوزیت نیز پایین و در حد پلیمر خالص است؛ اما در ناحیه دوم با افزایش درصد وزنی CNT، هدایت الکتریکی به یک‌باره جهش خارق‌العاده‌ای داشته و فاصله کوانتومی (D) کاهش یافته و در ناحیه سوم مقدار هدایت الکتریکی به اشباع می‌رسد.

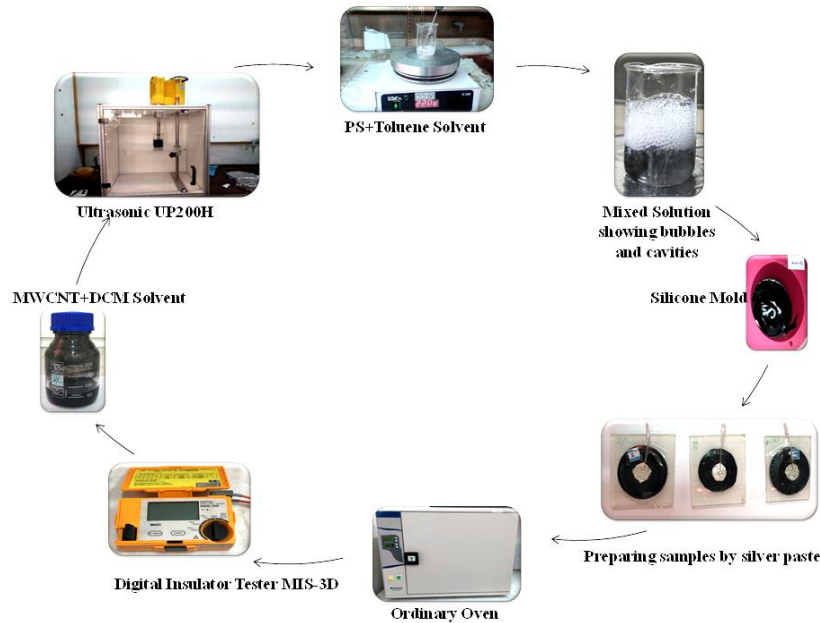


شکل (۱): هدایت الکتریکی نانوکامپوزیت پلیمر/CNT برحسب درصد وزنی پُرکننده CNT [۲۴].

در این پژوهش، خطی بودن پاسخ کالریترم جدید بر پایه نانوکامپوزیت پلی استایرن/نانولوله کربنی چند دیواره در ناحیه پرتوآوری مورد مطالعه قرار گرفته است.

² Hot press

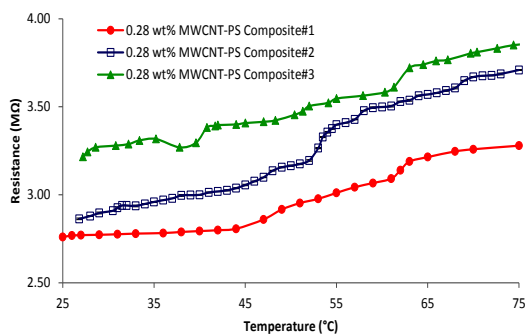
¹ Electrical Percolation Threshold



شکل (۲): مراحل ساخت و اندازه‌گیری خواص الکتریکی نمونه نانوکامپوزیت.

۳. نتایج و بحث

مطابق شکل ۳، مقاومت الکتریکی نمونه MWCNT-PS ۰/۲۸ wt% درون آون در محدوده دمایی ۲۵-۷۵ °C یعنی از دمای اتاق تا دمای نزدیک به نرم شدگی پلی استایرن اندازه‌گیری شد. شایان ذکر است که این اندازه‌گیری‌ها سه بار تکرار شده است. همان‌طور که از این شکل پیداست، با افزایش دما مقاومت الکتریکی نانوکامپوزیت افزایش پیدا می‌کند. افزایش مقاومت الکتریکی نانوکامپوزیت با دما را می‌توان به انبساط حرارتی ماتریس پلیمری و در نتیجه افزایش فاصله تونل زنی نانولوله‌های کربنی‌ها مرتبط دانست.



شکل (۳): اندازه‌گیری مقاومت الکتریکی نانوکامپوزیت MWCNT-PS ۰/۲۸ wt% در دماهای مختلف.

نمایی از مراحل ساخت و اندازه‌گیری خواص الکتریکی

نمونه نانوکامپوزیت در شکل ۲ به تصویر کشیده شده است.

با توجه به رابطه کالریمتری:

$$D = C \cdot \Delta T \quad (1)$$

که در این رابطه D دز جذبی بر حسب J/kg ظرفیت گرمایی ماده بر حسب $J/(kg \cdot ^\circ C)$ و ΔT افزایش دما بر حسب $^\circ C$ است، با داشتن مقادیر ظرفیت گرمایی ماده نانوکامپوزیت و مقدار افزایش دمای ماده می‌توان به مقدار کمیت دز جذبی پی برد. در رابطه ۱ با توجه به مقادیر ظرفیت گرمایی برای دو ماده نانولوله کربن و پلی استایرن [۲۵، ۴]، به‌ازای هر 1 kGy پرتودهی این ماده کامپوزیتی، به‌طور تقریبی حدود $1^\circ C$ دمای آن افزایش می‌یابد؛ لذا در این پژوهش تجربی می‌توان خطی بودن پاسخ این ماده به عنوان یک کالریمتر نوین در ناحیه دمایی $25-75^\circ C$ را حدوداً معادل 50 kGy پرتوگیری در نظر گرفت.

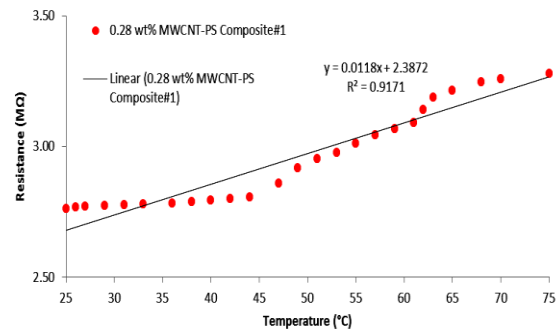
۳. نتیجه‌گیری

در این پژوهش، نانوکامپوزیت پلی استایرن- نانولوله کربن چند دیواره در غلظت ۰/۲۸ wt% ساخته شد و مقاومت الکتریکی آن در محدوده دمایی ۲۵-۷۵ °C یعنی از دمای اتاق تا دمای نزدیک به نرم شدگی پلی استایرن (دمای گذار شیشه‌ای^۱) با استفاده از اهم‌تر اندازه‌گیری شد. نتایج اندازه‌گیری‌ها نشان داد که با افزایش دما، مقاومت الکتریکی نانوکامپوزیت افزایش یافته و لذا با توجه به روابط کالریتری می‌تواند به عنوان یک کالریتر در ناحیه پرتوآوری برای اندازه‌گیری دز جذبی تا حدود ۵۰ kGy مورد استفاده قرار گیرد.

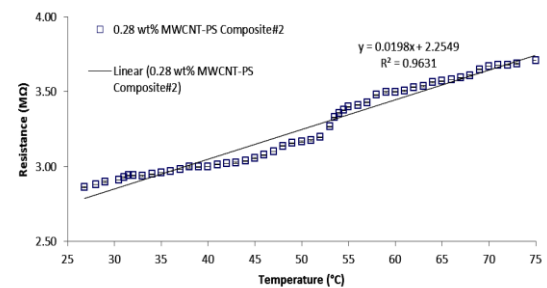
۴. تشکر و قدردانی

از همکاری صمیمانه پرسنل آزمایشگاه سیستم‌های دزیمتری و کالیبراسیون، مرکز تحقیقات سلامت و کشاورزی البرز، در اندازه‌گیری‌های مربوطه تقدیر و سپاسگزاری می‌شود.

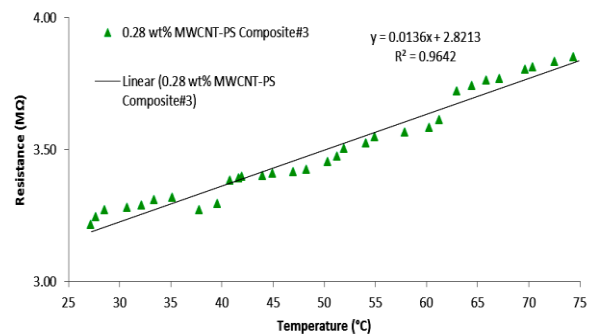
در شکل ۴ خطی بودن پاسخ کالریتر نانوکامپوزیت MWCNT-PS ۰/۲۸ wt% در دماهای مختلف و نمایش ضریب همبستگی R^2 برای سه بار تکرارپذیری به تصویر کشیده شده است.



(الف)



(ب)



(پ)

شکل (۴): بررسی خطی بودن پاسخ کالریتر نانوکامپوزیت MWCNT-PS ۰/۲۸ wt% در دماهای مختلف و نمایش ضریب همبستگی R^2 در هر مورد به همراه تکرارپذیری در سه حالت الف تا پ.

¹ Glass Transition Temperature

۵. مراجع

1. A. R. Vatankeh, M. A. Hosseini, S. Malekie. The characterization of gamma-irradiated carbon-nanostructured materials carried out using a multi-analytical approach including Raman spectroscopy. *Appl. Surf. Sci.* 488 (2019) 671-680.
2. R. Mehrara, S. Malekie, S. M. Saleh Kotahi, S. Kashian. Introducing a novel low energy gamma ray shield utilizing Polycarbonate Bismuth Oxide composite. *Sci. Rep.* 11 (2021) 10614.
3. S. Malekie, F. Ziaie, S. Feizi, A. Esmaeli. Dosimetry characteristics of HDPE-SWCNT nanocomposite for real time application. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A.* 833 (2016) 127-133.
4. S. Malekie, F. Ziaie, A. Esmaeli. Study on dosimetry characteristics of polymer-CNT nanocomposites: Effect of polymer matrix. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A.* 816 (2016) 101-105.
5. S. Malekie, F. Ziaie. Study on a novel dosimeter based on polyethylene-carbon nanotube composite. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A.* 791 (2015) 1-5.
6. W. S. Bao, S. A. Meguid, Z. H. Zhu, Y. Pan, G. J. Wengc. A novel approach to predict the electrical conductivity of multifunctional nanocomposites. *Mech. Mater.* 46 (2012) 129-138.
7. T. Durkop, S. A. Getty, E. Cobas, M. S. Fuhrer. Extraordinary mobility in semiconducting carbon nanotubes. *Nano Lett.* 4 (2004) 35-39.
8. Z. Yao, C. Kane, C. Dekker. High-Field Electrical Transport in Single-Wall Carbon Nanotubes. *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000) 2941-2944.
9. P. M. Ajayan, O. Stephan, C. Colliex, D. Trauth. Aligned carbon nanotube arrays formed by cutting a polymer resin-nanotube composite. *Science* 265 (1994) 1212-1214.
10. A. Mosayebi, S. Malekie, F. Ziaie. A feasibility study of polystyrene/CNT nano-composite as a dosimeter for diagnostic and therapeutic purposes. *J. Instrum.* 12 (2017) P05012.
11. S. Malekie, F. Ziaie. A two-dimensional simulation to predict the electrical behavior of carbon nanotube/polymer composites. *J. Polym. Eng.* 37 (2017) 205-210.
12. A. Mosayebi, S. Malekie, F. Ziaie, H. Daneshvar. Linearity response characterization of Polystyrene/Graphene oxide nanocomposite as real-time dosimeter for therapeutic purposes. *Iran. J. Med. Phys.* 15 (2018) 391-391.
13. A. Mosayebi, S. Malekie, F. Ziaie, H. Daneshvar. Experimental evaluation of thermal stability of PS-MWCNT nanocomposite as a real-time dosimeter. *Iran. J. Med. Phys.* 15 (2018) 14-14.
14. A. Mosayebi, S. Malekie, A. Rahimi, F. Ziaie. Experimental study on polystyrene-MWCNT nanocomposite as a radiation dosimeter. *Radiat. Phys. Chem.* (2019) 108362.
15. A. Mosayebi, S. Malekie, F. Ziaie, M. Ataei Naeini. Experimental investigation of dosimetry response of nanocomposite of polystyrene-multiwall carbon nanotube in gamma radiation field. *Iran. J. Rad. Saf. Mas.* 7 (2019) 21-26.
16. F. Ziaie, S. Malekie. Study of electrical properties of a novel dosimeter based on polymer-carbon nanotube nano-composite. *Iran. J. Rad. Saf. Mas.* 2 (2014) 17-20.
17. F. Salimi-Ahmadabad, S. Malekie, F. Ziaie. The investigation of reinforcement phase distribution on electrical conductivity of Polymer-Carbon nanotube composite as radiation dosimeter: A Monte Carlo Method. *Iran. J. Rad. Saf. Mas.* 4 (2016) 49-55.
18. A. Mosayebi, S. Malekie, F. Ziaie. Determination of the electrical percolation threshold of Polystyrene-Graphene Oxide nanocomposite using the experiment and simulation methods. *Iran. J. Rad. Saf. Mas.* 8 (2020) 295-298.
19. A. Rahimi, S. Malekie, A. Mosayebi, N. Sheikh, F. Ziaie. Study on Polystyrene/MWCNT Nanocomposite as a Temperature Sensor. *Int. J. Nanosci. Nanotechnol.* 17 (2021) 55-63.
20. A. Rahimi, F. Ziaie, N. Sheikh, S. Malekie. Calorimetry System Based on Polystyrene/MWCNT Nanocomposite for Electron Beam Dosimetry: A New Approach. *Nanotechnol. Russ.* 15 (2020) 175-181.
21. O. Korostynska, K. Arshak, D. Morris, A. Arshak, E. Jafer. Radiation-induced changes in the electrical properties of carbon filled PVDF thick films. *Mater. Sci. Eng. B.* 141 (2007) 115-120.
22. J. Ma, J. Yeow. Effect of percolation on electrical conductivity in a carbon nanotube-based film radiation sensor. 2008 8th IEEE Conf. Nanotechnology, Arlington, TX, USA, 2008.
23. E. V. Barrera, R. Wilkins, M. Shofner, M. Pulikkathara X, R. Vaidyanathan. Functionalized carbon nanotube-polymer composites and interactions with radiation, United States Patent and Trademark Office, Work of the US Gov. Public Use Permitted. 2008.
24. L.J. Huijbregts. Charge transport and morphology in nano fillers and polymer nanocomposites, Technische Universiteit Eindhoven, Eindhoven, 2008.
25. S. Maleki, F. Ziaie, M. M. Larjani. Simulation of a novel dosimeter based on electrical characteristics of polymethyl Methacrylate-Carbon nanotube composite. *Nucl. Sci. Technol.* 79 (2017) 53-62.