

# Ảnh hưởng của thành phần chất nền, nồng độ tạp và công nghệ chế tạo lên tính chất nhiệt phát quang của liều kế thủy tinh $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Tm}$

Effect of host composition, impurity concentration, and manufacturing technology on thermoluminescent properties of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Tm}$  glass dosimeter

Trần Ngọc<sup>a,b\*</sup>, Phan Văn Độ<sup>c</sup>  
Tran Ngoc<sup>a,b\*</sup>, Phan Van Do<sup>c</sup>

<sup>a</sup>Viện Nghiên cứu và Phát triển công nghệ cao, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

<sup>a</sup>Institute of Research and Development, Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

<sup>b</sup>Khoa Môi trường và Khoa học tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

<sup>b</sup>Faculty of Environmental and Natural Sciences, Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

<sup>c</sup>Trường Đại học Thủy lợi, 175 Tây Sơn, Đống Đa, Hà Nội, Việt Nam

<sup>c</sup>Thuyloi University, 175 Tay Son, Dong Da, Hanoi, Vietnam

(Ngày nhận bài: 03/10/2023, ngày phản biện xong: 06/12/2023, ngày chấp nhận đăng: 04/01/2024)

## Tóm tắt

Thủy tinh  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  pha tạp thulium (Tm) được chế tạo thành công bằng phương pháp nung nóng chảy trong môi trường khử sử dụng than graphit. Thành phần chất nền, nồng độ tạp Tm tối ưu cho hiệu ứng nhiệt phát quang (NPQ) của vật liệu xác định được là  $30\text{Li}_2\text{O}+69,5\text{H}_3\text{BO}_3+0,5\text{Tm}_2\text{O}_3$ . Các thông số tối ưu trong công nghệ chế tạo thủy tinh đã được xác định: nhiệt độ nung ở  $1020^\circ\text{C}$ , tốc độ tăng nhiệt từ nhiệt độ phòng (RT) là  $2^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ , thời gian nung 1,5 giờ và tốc độ làm lạnh mẫu về nhiệt độ RT là  $5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ . Nguồn gốc của các trạng thái bẫy (bẫy điện tử và bẫy lỗ trống), vai trò của các ion tạp Tm trong quá trình NPQ đã được thảo luận. Các kết quả thực nghiệm được tổng hợp và phân tích, thảo luận theo các yêu cầu về tiêu chuẩn của liều kế dùng trong an toàn bức xạ.

*Từ khóa:* Liều kế; an toàn bức xạ; nhiệt phát quang; bẫy điện tử; bẫy lỗ trống.

## Abstract

The  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  glass doped with thulium (Tm) was successfully manufactured by heating in a reducing environment using graphite coal. The optimal host composition and impurity concentration Tm for the thermoluminescence effect of the material were determined to be  $30\text{Li}_2\text{O}+69,5\text{H}_3\text{BO}_3+0,5\text{Tm}_2\text{O}_3$ . The optimal parameters in glass manufacturing technology have been determined: calcination temperature at  $1020^\circ\text{C}$ , heat rise rate from room temperature (RT) is  $2^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ , calcination time 1,5 hours and speed the sample cooling temperature to RT temperature is  $5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ . The origin of the trap states (electron trap and hole trap) and the role of Tm impurity ions in the thermoluminescence process were discussed. The experimental results are synthesized, analyzed, and discussed according to the standard requirements of dosimeters used in radiation safety.

*Keywords:* Dosimeters; radiation safety; thermoluminescence; electron trap; hole trap.

\*Tác giả liên hệ: Tran Ngoc

Email: daotaoqb@gmail.com hoặc tranngoc11@duytan.edu.vn

## 1. Giới thiệu

Các liều kế ở dạng thủy tinh thường dễ dàng cưa cắt để tạo ra những liều kế đồng nhất cả về kích thước và khối lượng. Ngoài ra, do công nghệ chế tạo thủy tinh thường đơn giản, và có thể chế tạo với cỡ lớn với độ đồng nhất về nồng độ tạp cao, nên giá thành sản phẩm thường thấp. Tuy nhiên, do cấu trúc các mức bẫy trong vùng cấm không có giá trị gián đoạn rõ ràng và thống nhất như ở đơn tinh thể và đa tinh thể, nên những chuyển dời tạo hiệu ứng NPQ thường xảy ra trong cấu trúc trật tự gần hay phạm vi cục bộ nào đó, vì vậy nói chung độ nhạy NPQ của các vật liệu thủy tinh không cao [1, 2].  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  (LBO) pha tạp các nguyên tố kim loại chuyển tiếp (TM) hoặc đất hiếm (RE) là vật liệu NPQ rất nổi tiếng trong việc chế tạo các liều kế ứng dụng trong y học hạt nhân vì chúng có nguyên tử số hiệu dụng ( $Z_{\text{eff}} = 7,3$ ) gần tương đương mô sinh học [1, 3]. Đây là vật liệu có độ nhạy liều cao, độ ổn định lý hóa tốt, có độ suy giảm tín hiệu theo thời gian và nhiệt độ thấp. Ngoài ra, vật liệu này có dải đáp ứng tuyến tính liều rộng, dải bức xạ dùng trong đo liều nằm trong khoảng 200 - 300 °C, lại nằm trong vùng nhạy của các detector vùng ánh sáng tử ngoại - nhìn thấy (UV-ViS) rất thuận lợi cho việc thu nhận tín hiệu NPQ [4].

Trong bài báo trước [5] chúng tôi đã giới thiệu các kết quả nghiên cứu tính chất NPQ, và đánh giá khả năng đáp ứng các tiêu chí của vật liệu  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  pha tạp thulium (LBO:Tm) dùng làm liều kế đo liều cá nhân và đo liều xạ trị trong lĩnh vực y học hạt nhân. Tuy nhiên, với các vật liệu sử dụng làm liều kế NPQ (Thermaluminescence dosimeter – TLD) thì độ nhạy và dạng đường cong NPQ phụ thuộc rất nhiều vào các tham số của quy trình chế tạo mẫu như nồng độ tạp, nhiệt độ nung, tốc độ làm lạnh,...[1, 5]. Ngoài ra, nguồn gốc của các dải bức xạ NPQ và ảnh hưởng của chất nền LBO lên sự phát quang của tạp Tm là vấn đề rất được

quan tâm. Vì vậy, trong bài báo này chúng tôi giới thiệu các kết quả của việc tối ưu hóa công nghệ chế tạo vật liệu thủy tinh LBO:Tm theo hướng đo liều cá nhân và liều trong xạ trị, bằng cách thay đổi nồng độ tạp Tm, nhiệt độ nung, thời gian nung và tốc độ làm lạnh mẫu. Ảnh hưởng của chất nền lên tính chất NPQ và nguồn gốc của các trạng thái bẫy (bẫy điện tử và bẫy lỗ trống), vai trò của các ion tạp Tm trong quá trình tạo nên bức xạ NPQ. Các kết quả thực nghiệm được tổng hợp và phân tích, thảo luận theo các yêu cầu về tiêu chuẩn của liều kế dùng trong an toàn bức xạ.

## 2. Phương pháp thực nghiệm

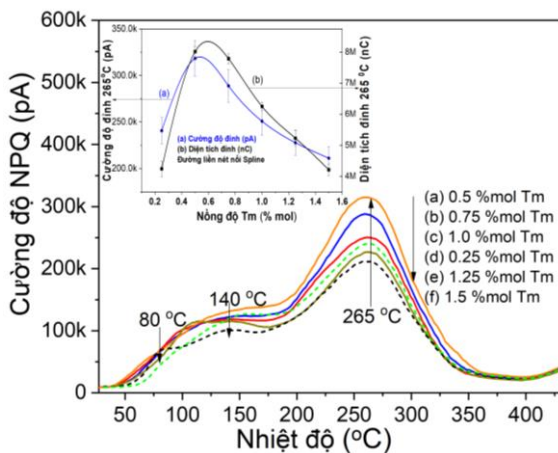
Vật liệu LBO:Tm dạng thủy tinh được chế tạo bằng phương pháp nung nóng chảy trong môi trường khử sử dụng than graphit. Các tiền chất ban đầu gồm  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_3\text{BO}_3$  và  $\text{Tm}_2\text{O}_3$  được nghiền, trộn theo tỉ lệ được chọn sẵn  $30\text{Li}_2\text{O} + (70-x)\text{H}_3\text{BO}_3 + x\text{Tm}_2\text{O}_3$  trong cối mã nã. Sản phẩm sau đó được nén nhẹ vào khuôn than (graphit) rồi cho vào lò nung. Lò nung được đặt ở chế độ gia nhiệt  $2^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ . Khi nhiệt độ trong lò đến  $300^\circ\text{C}$ , dùng gia nhiệt để giữ cho lò ở nhiệt độ này trong 1,0 giờ (nhiệt độ chuyển pha cấu trúc lần 1 của vật liệu). Tiếp tục tăng nhiệt độ đến  $(950^\circ\text{C} - 1050^\circ\text{C})$  và giữ thật ổn định nhiệt độ này trong thời gian 1-2 giờ. Sau đó làm lạnh mẫu đến nhiệt độ phòng với tốc độ làm nguội  $4-5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ . Lấy mẫu ra khỏi khuôn than, cho mẫu vào chén sứ không men và ủ mẫu ở  $400^\circ\text{C}$  trong 2 giờ (để ổn định cấu trúc của thủy tinh). Mẫu sau đó được rửa sạch bằng nước cất nhiều lần, và cắt, mài thành các mẫu có kích thước đồng đều (tùy theo mục đích sử dụng). Lô mẫu sau đó được đưa vào tủ sấy ở  $50^\circ\text{C}$  trong 24 h. Các phép đo đường cong NPQ tích phân (glow curve) và đọc liều được thực hiện trên máy đo thương mại HARSHAW-D 3500. Liều  $\gamma$  được thực hiện từ nguồn  $\text{Co}^{60}$  (chuẩn đến  $\mu\text{Gy}$ ) dùng trong xạ trị.

### 3. Kết quả và thảo luận

#### 3.1. Tối ưu hóa công nghệ chế tạo vật liệu thủy tinh LBO:Tm theo hướng đo liều

##### 3.1.1. Tối ưu hóa nồng độ tạp Tm

Như đã phân tích ở trên, cấu trúc đường cong NPQ của vật liệu phụ thuộc rất mạnh vào loại tạp chất và nồng độ của nó có mặt trong vật liệu. Ngoài ra cấu trúc này còn phụ thuộc vào hợp chất nền và phương pháp chế tạo, nói cách khác là phụ thuộc vào tỷ lệ thành phần các phối liệu ban đầu và phương pháp chế tạo vật liệu [5], [6], [7], [8]. Thông số đầu tiên chúng ta cần quan tâm là nồng độ tạp Tm cho ta hiệu suất NPQ tối ưu nhất. Để tối ưu hóa tính chất NPQ theo nồng độ tạp khác nhau, chúng tôi đã chế tạo các mẻ thủy tinh LBO có nồng độ tạp Tm từ 0,25%mol đến 1,5%mol ( $x = 0,25; 0,5; 0,75; 1,0; 1,25$  và  $1,5\%$ mol). Hình 1 là các đường cong NPQ của thủy tinh LBO:xTm với các nồng độ tạp chất Tm khác nhau. Tất cả các mẫu trước khi thực hiện phép đo đều được chiếu xạ tia  $\gamma$  với suất liều  $D = 5$  Gy, tốc độ gia nhiệt  $\beta = 2^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ , đốt nóng sơ bộ (preheat) ở  $30^\circ\text{C}$ . Chúng ta thấy cấu trúc của các đường cong có khác nhau nhưng đều thể hiện 3 dải phát xạ có các cực đại ở khoảng  $80^\circ\text{C}$ ,  $140^\circ\text{C}$  và  $265^\circ\text{C}$ . Dải có cực đại ở  $265^\circ\text{C}$  có cường độ mạnh nhất (dải chính) thường được chọn dùng trong đo liều.

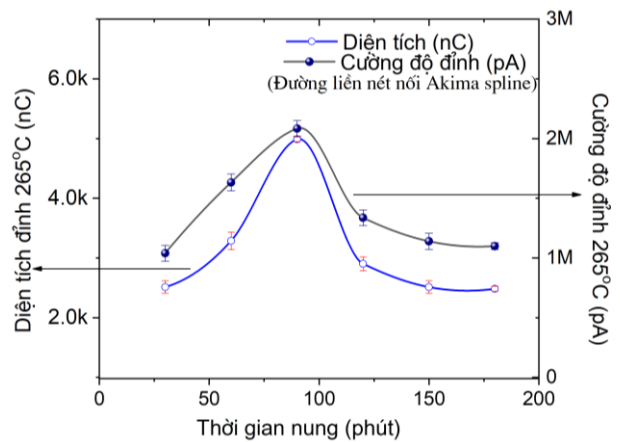


Hình 1. Đường cong NPQ của thủy tinh LBO:xTm. Hình nhỏ đưa vào là diễn biến cường độ và diện tích dưới đường cong NPQ theo nồng độ tạp Tm có trong mẫu (mẫu được chiếu xạ tia  $\gamma$  (5 Gy), tốc độ gia nhiệt  $\beta = 5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ , preheat ở  $30^\circ\text{C}$ ).

Kết quả này cho thấy, các mẫu có nồng độ trong khoảng 0,5 đến 1,0%mol đều có độ nhạy tốt, dạng đường cong đơn giản hơn do hai dải ở  $80^\circ\text{C}$  và  $140^\circ\text{C}$  được nhập làm 1 ở khoảng  $135^\circ\text{C}$ - $140^\circ\text{C}$ . Hình vẽ đưa vào trong Hình 1 là diễn biến của cường độ và diện tích của đỉnh đo liều theo nồng độ tạp Tm có trong mẫu. Ta thấy, mẫu có nồng độ trong khoảng 0,5 đến 0,75%mol có độ nhạy tốt nhất và cấu trúc đường cong đơn giản nhất nên phù hợp nhất cho việc đo liều. Vì vậy chúng tôi đã chọn nồng độ tạp Tm tối ưu là 0,5 - 0,75%mol cho tất cả các mẫu chế tạo sau này.

##### 3.1.2. Tối ưu hóa thời gian nung mẫu

Thời gian nung mẫu (tại nhiệt độ tối ưu  $1020^\circ\text{C}$ ) cũng là một thông số ảnh hưởng đến độ nhạy NPQ và chất lượng của mẫu.



Hình 2. Sự phụ thuộc của cường độ và diện tích đỉnh đo liều theo thời gian nung mẫu.

Hình 3 cho thấy diễn biến của cường độ và diện tích của đỉnh đo liều theo thời gian nung tại nhiệt độ  $1020^\circ\text{C}$ . Căn cứ vào đồ thị này, chúng ta thấy thời gian nung mẫu tại nhiệt độ  $1020^\circ\text{C}$  từ 1 giờ đến 2 giờ là phù hợp, trong đó thời gian nung 1,5 giờ là tối ưu nhất. Khi thời gian nung kéo dài trên 2 giờ, hầu như ảnh hưởng rất ít đến độ nhạy NPQ, tuy nhiên độ nhạy lại rất thấp.

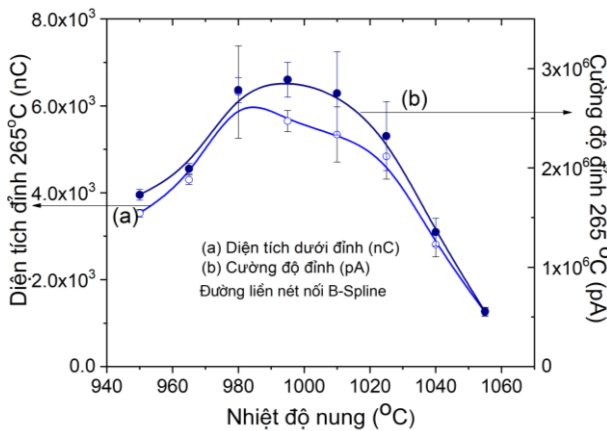
##### 3.1.3. Tối ưu hóa nhiệt độ nung mẫu

Hình 3 biểu diễn sự phụ thuộc của cường độ và diện tích đỉnh đo liều theo nhiệt độ nung mẫu.

Trong thí nghiệm này, nhiệt độ nung mẫu được khảo sát trong khoảng  $950^\circ\text{C}$  (nhiệt độ

chuyển pha từ rắn qua lỏng, mẫu bắt đầu nóng chảy thành thủy tinh) đến 1050°C (thời gian nung 1,5 giờ). Nhiệt độ và thời gian nung mẫu này đã đảm bảo rằng mẫu đã hoàn thành sự chuyển pha thủy tinh.

Phân tích kết quả khảo sát ta thấy, nhiệt độ nung mẫu cho phát xạ NPQ tối ưu trong khoảng 980°C đến 1020°C (thời gian nung 1,5 giờ). Theo chúng tôi, kết quả này hoàn toàn hợp lý, vì vật liệu LBO có nhiệt độ chuyển pha (rắn - lỏng) ở 950°C, nên nhiệt độ nung mẫu tối ưu phải lớn hơn nhiệt độ này. Mặt khác, ở nhiệt độ nung trong khoảng này cho phép hòa tan tốt tạp đất hiếm (Tm) tạo ra sự đồng nhất cho mẫu. Từ đó chúng tôi chọn nhiệt độ nung là 1020°C cho tất cả các mẻ sản phẩm sau này.

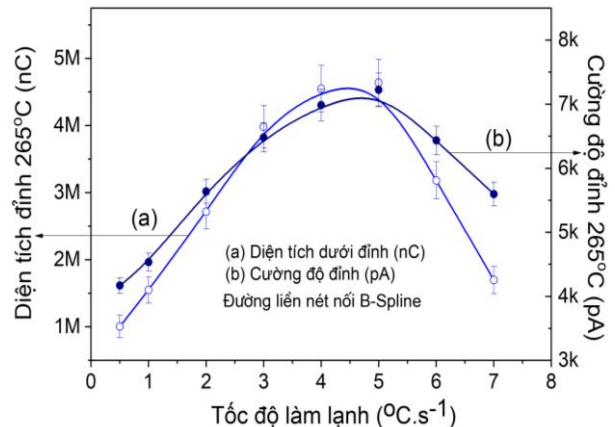


Hình 3. Sự phụ thuộc của cường độ và diện tích đỉnh đo liều theo nhiệt độ nung mẫu (trong thời gian 1,5 giờ).

### 3.1.4. Tối ưu hóa tốc độ làm nguội mẫu

Trong chế tạo thủy tinh, tốc độ làm nguội mẫu ở cuối của quá trình nung có ảnh hưởng rất lớn đến chất lượng của sản phẩm. Phần lớn các sản phẩm thủy tinh được chế tạo bằng phương pháp nung nóng chảy thường được làm nguội nhanh, trái với thủy tinh được chế tạo bằng phương pháp sol-gel, tốc độ làm nguội mẫu thường chậm hơn rất nhiều [6, 9]. Tuy nhiên, việc áp dụng kỹ thuật làm nguội nhanh hay chậm còn phụ thuộc vào thành phần các tiền chất và mục tiêu sử dụng của sản phẩm. Với vật liệu thủy tinh LBO được chế tạo cho mục đích đo liều bức xạ (làm liều kế), thì tính đồng nhất của sản phẩm và hiệu suất NPQ

(độ nhạy) được xem như là các tiêu chí mẫu chốt cần đạt được. Vì vậy, việc tối ưu hóa tốc độ làm nguội mẫu trong quá trình chế tạo là để tìm ra thông số tối ưu để mẫu có hiệu suất NPQ đạt cực đại và mẫu có tính đồng nhất trong một mẻ chế tạo [5], [8], [9]. Hình 4 mô tả sự phụ thuộc của cường độ và diện tích đỉnh đo liều vào tốc độ làm nguội mẫu. Kết quả này cho thấy, tốc độ làm nguội tốt nhất trong khoảng từ 3 đến 6°C.s<sup>-1</sup>, trong đó tối ưu nhất là 4 đến 5°C.s<sup>-1</sup>. Trong thí nghiệm này, việc làm nguội mẫu được chúng tôi chia thành 2 giai đoạn: ở giai đoạn thứ nhất (từ 1020°C - 700°C), bằng cách ngắt nguồn điện cung cấp cho lò và mở nắp lò đưa mẫu ra gần cửa lò, tốc độ làm nguội của giai đoạn này là 3-4°C.s<sup>-1</sup>; ở giai đoạn thứ hai (từ 700°C - 30°C), bằng cách đưa mẫu ra khỏi lò đặt trên một tấm nhôm dày, tốc độ làm nguội của giai đoạn này là 5-6°C.s<sup>-1</sup>.



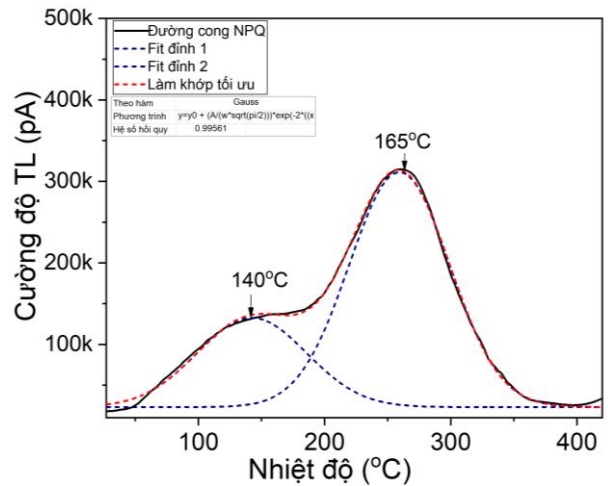
Hình 4. Sự phụ thuộc cường độ và diện tích đỉnh đo liều vào tốc độ làm nguội mẫu.

## 3.2. Nguồn gốc của bức xạ TL từ vật liệu LBO:Tm

### 3.2.1. Đường cong TL từ vật liệu LBO:Tm (sau khi được tối ưu hóa các thông số chế tạo)

Hình 5 trình bày đường cong NPQ của mẫu thủy tinh LBO:Tm (chiếu xạ tia  $\gamma$  với suất liều  $D = 5$  Gy, tốc độ gia nhiệt  $\beta = 2^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ , preheat ở  $30^\circ\text{C}$ ). Mẫu được chọn có nồng độ pha tạp 0,5%mol Tm, nung mẫu ở nhiệt độ 1020°C trong thời gian 1,5 giờ và tốc độ làm nguội  $5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ta thấy rằng cấu trúc đường cong khá đơn giản, dải

bức xạ NPQ ở 80°C biến mất chỉ còn 2 dải ở 140°C và 265°C. Ta thấy dạng của các dải trên đường cong phát sáng khá đối xứng với hai phía nhiệt độ thấp và cao trên trục nhiệt độ. Vì vậy ta có thể sử dụng phương pháp fitting theo hàm Gauss (với hệ số hồi quy  $R = 0,9956$ ). Cùng với việc xem quy luật phát xạ NPQ là gần đúng theo động học bậc 2, áp dụng phương pháp dạng đỉnh của R. Chen [4], ta xác định năng lượng kích hoạt  $E_T$  (eV) (độ sâu bẫy), thời gian sống  $\tau$  (s) và hệ số tần số  $s$  (Hz) của các điện tử trên bẫy tương ứng với các cực đại trên đường cong NPQ của các đỉnh phát sáng. Kết quả được trình bày trong Bảng 1.



Hình 5. Đường cong NPQ của mẫu thủy tinh LBO:Tm (chiếu xạ tia  $\gamma$  với  $D = 5$  Gy, tốc độ gia nhiệt  $\beta = 2^\circ\text{C}.\text{s}^{-1}$ , preheat ở  $30^\circ\text{C}$ )

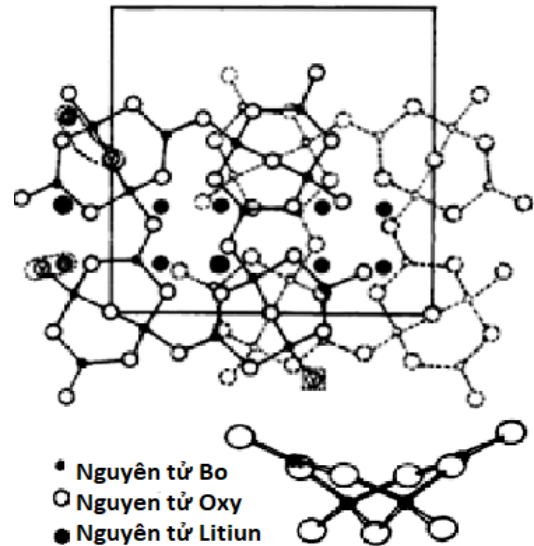
Bảng 1. Năng lượng kích hoạt  $E_T$  (eV), hệ số tần số  $s$  (Hz) và thời gian sống  $\tau$  (s) tương ứng với các bẫy điện tử trên đường cong NPQ.

Cực đại đỉnh $T_{\text{max}}$ ( $^\circ\text{C}$ )	Thông số động học của bẫy		
	$E_T$ (eV)	$s$ (Hz)	$\tau$ (giờ, năm)
140	0,94	$1,4.10^{12}$	6,8 năm
265	1,32	$1,1.10^9$	$1,9.10^2$ năm

Kết quả từ Bảng 1 cho thấy, với đỉnh đo liều được chọn ở  $265^\circ\text{C}$  có độ nhạy tốt, độ sâu bẫy vừa phải và hệ số tần số thoát nhỏ, dẫn đến độ suy giảm (fading) tín hiệu theo thời gian và nhiệt độ thấp, điều này phù hợp cho việc đo liều tích lũy [10].

### 3.2.2. Nguồn gốc của bức xạ NPQ từ vật liệu LBO:Tm

Để tìm hiểu sâu hơn về nguồn gốc của các dải bức xạ NPQ trong thủy tinh LBO, chúng ta cần phân tích chi tiết về cấu trúc nguyên tử của nền borat kiềm cũng như các khuyết tật trong vật liệu đó [11]. Trước hết ta xét borat kiềm đơn (theo nghĩa là không phải borat kiềm hỗn hợp), thí dụ  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Tm}$ . Thực chất đó là hỗn hợp của hai phân tử  $\text{B}_2\text{O}_3$  và một phân tử  $\text{Li}_2\text{O}$ . Nhóm  $\text{B}_2\text{O}_3$  đóng vai trò phân tử tạo thành mạng (network forming molecule) còn  $\text{Li}_2\text{O}$  chính là phân tử biến tính mạng (network modifying molecule). Đơn vị cấu trúc cơ sở của  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  là nhóm  $\text{B}_4\text{O}_9^{2-}$ , nó được tạo bởi hai tứ diện  $\text{BO}_4$  và hai tam giác  $\text{BO}_3$  như Hình 6.



Hình 6. Cấu trúc mạng tinh thể của  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  và đơn vị cấu trúc cơ sở của nó [6]

Nguyên tử B có ba điện tử hóa trị, như vậy trong cấu hình tứ diện, nó phải lấy thêm một điện tử từ cation biến tính mạng Li. Nói khác đi, phức tứ diện này trở thành một khuyết tật điểm âm nếu nó nằm trong trạng thái cô lập với các cation liền kề đóng vai trò bù điện tích. Các khuyết tật âm

như vậy sẽ đóng vai trò các bẫy lỗ. Nếu ta bổ sung một phân tử  $\text{Li}_2\text{O}$  thì nguyên tử oxygen với hai điện tử đầy đủ của nó sẽ đóng vai trò hai điện tử liên kết để biến hai nguyên tử B ở cấu hình tam giác thành cấu trúc hình tứ diện và để lại hai ion  $\text{Li}^+$  ở trạng thái điện kẽ. Như vậy các phân tử biến tính mạng  $\text{Li}_2\text{O}$  đã tạo ra các tâm bẫy điện tử gắn liền với các cation  $\text{Li}^+$  [11, 12]. Và kết quả là, các “cluster” bao gồm các cation điện kẽ được tạo thành trước khi, trong khi và sau khi chiếu xạ sẽ là những bẫy điện tử rất hiệu quả [0]. Như vậy rõ ràng là các trạng thái bẫy, kể cả bẫy điện tử cũng như bẫy lỗ trống, đều phát sinh từ những khuyết tật riêng gắn liền với đơn vị cấu trúc cơ bản của mạng  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ . Nếu bây giờ ta pha tạp  $\text{Tm}^{3+}$  vào  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ , chúng sẽ dễ dàng chiếm một vị trí điện kẽ nào đó hoặc thế chỗ cho nguyên tử B. Vì khác nhau về bán kính ion nên khi ion  $\text{Tm}^{3+}$  nằm ở gần các vị trí của các bẫy gắn liền với các ion Li nói ở trên, chúng sẽ thay đổi phân bố mật (profile) bẫy một cách rõ rệt [11, 12]. Đó chính là nguồn gốc của các tâm bẫy ứng với năng lượng kích hoạt 0,94 eV và 1,32 eV thể hiện trên đường nhiệt phát quang của  $\text{LBO:Tm}$  mà ta đã xác định được. Các tâm bẫy điện tử này được giả thiết là các cấu trúc phức hợp bao gồm các khuyết tật riêng (gắn liền với Li) kết hợp với các ion  $\text{Tm}^{3+}$  mang điện tích dương. Mặt khác, như chúng ta biết, trong cơ chế thông thường của nhiệt phát quang, luôn luôn có quá trình chuyển động của các điện tử và các ion khi nâng nhiệt độ mẫu, điều này cho phép ta có thể nghĩ đến giả thuyết là các tương tác động học do sự chuyển động của các hạt tải (điện tử và ion) tại các tâm, bẫy có thể giải phóng năng lượng dưới dạng bức xạ NPQ. Hoặc năng lượng đó có thể truyền cộng hưởng tới các ion tạp  $\text{Tm}^{3+}$  gần đó, kích thích tâm này trở thành tâm phát quang [11, 12]. Tóm lại, các trạng thái bẫy, kể cả bẫy điện tử cũng như bẫy lỗ trống, đều phát sinh từ những khuyết tật riêng gắn liền với đơn vị cấu trúc cơ bản của mạng  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ , còn các ion tạp  $\text{Tm}^{3+}$  có thể đóng vai trò là tâm phát quang tạo nên bức xạ NPQ.

#### 4. Kết luận

Kết quả của việc tối ưu hóa công nghệ chế tạo vật liệu thủy tinh  $\text{LBO:Tm}$  theo hướng đo liều cá nhân và liều trong xạ trị đã được nghiên cứu. Nồng độ tạp Tm tối ưu là 0,5 – 0,75% mol, nhiệt độ nung tối ưu để hiệu suất NPQ lớn nhất là  $1020^\circ\text{C}$ , thời gian nung và tốc độ làm nguội mẫu tương ứng là 1,5 giờ và  $4-5^\circ\text{Cs}^{-1}$ . Ảnh hưởng của chất nền lên tính chất NPQ đã được thảo luận thông qua việc phân tích cấu trúc mạng của thủy tinh  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ . Các trạng thái bẫy, kể cả bẫy điện tử cũng như bẫy lỗ trống, đều phát sinh từ những khuyết tật riêng gắn liền với đơn vị cấu trúc cơ bản của mạng  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ , còn các ion tạp  $\text{Tm}^{3+}$  có thể đóng vai trò là tâm phát quang tạo nên bức xạ NPQ. Các kết quả thực nghiệm được tổng hợp và phân tích, thảo luận theo các yêu cầu về tiêu chuẩn của liều kế dùng trong an toàn bức xạ.

#### Tài liệu tham khảo

- [1] Horowitz, Y.S. (1984). “*Thermoluminescence and Thermoluminescence dosimetry*”. CRC Press. Inc. Boca Raton Florida. Vol. I, II, III.
- [2] Ngọc, T. (2021). “*Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt phát quang của thủy tinh aluminoborate-kiểm pha tạp samarium (ABLi:Sm) định hướng ứng dụng trong đo liều bức xạ tia X*”. Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân. 01(44), 30-35.
- [3] Duyệt, P.V. (1986). “*An toàn vệ sinh phóng xạ*”. Nxb Y học, Hà Nội.
- [4] Chen, R and McKeever, S.W.S. (1998). “*Theory of thermoluminescence and Related phenomena*”. World Scientific.
- [5] Ngọc, T. Kha, N.X. Vinh, T.T. Phương, N. D. Linh, T.T. “*Chế tạo liều kế tương đương mô  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Tm}$  sử dụng trong đo liều xạ trị và đo liều cá nhân*”. Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân. 4(53) (2022). 31-37.
- [6] Prokic, M. (2001). “*Lithium Borate Solid TL Detectors*”. Radiat. Meas. Vol 33, pp 393-396.
- [7] Martini, M. Meinardi, F. Kovacs, L. and Polgar, K. (1996). “*Spectrally Resolved Thermoluminescence of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$  Single Crystals*”. Radiat. Prot. Dosim. Vol 47, pp 239-242.
- [8] Prokic, M. (2002). “*Dosimetric Characteristics Of  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu,Ag,P}$  Solid TL Detectors*”. Radiat. Prot. Dosim. Vol 100, No 1-4. pp 265-268.
- [9] Sreekanth Chakradhar, R. P. Yasoda, B. Lakshmana Rao, J and Gopal, N. O. (2006). “*Mixed alkali effect*

- in Li<sub>2</sub>O–Na<sub>2</sub>O–B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glasses containing CuO – An EPR and optical study*". Journal of Non-Crystalline Solids. Vol 352, Issues 36-37. pp. 3864-3871.
- [10] Jan van Dam and Ginette Marinello. (1999). "Methods for *in vivo* dosimetry in External Radiotherapy", Physics for clinucak radiotherapy. Booklet No.1.
- [11] Srivastava, J. K and Supe, S. J. (1989). "The Thermoluminescence characteristation of Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> Doped with Cu". J. Phys. D: App. Phys. Vol 22. pp. 1537–1543.
- [12] Visocekas, R. Lorrain, S and Marinello, G. (1985). "Evaluation of a preparation of Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Cu for thermoluminescence dosimetry". Nucl. Sci. J, Vol 22 (1). pp 61-66.