

## کاربرد طیف سنجی طول عمر پوزیترون (PLS) و پراش پرتو ایکس (XRD) به عنوان ابزارهای اندازه‌گیری در بررسی اثر تابش نوترون سریع بر ویژگی‌های ساختاری نانوپودرهای فریت نیکل

سجاد حساری پور<sup>۱\*</sup>، سید مرتضی عسگریان<sup>۲</sup>، زهره کارگر<sup>۳</sup>

### اطلاعات مقاله:

### چکیده

نشریه رویکردهای نوین در

آزمایشگاه‌های علمی ایران

سال پنجم، شماره ۲، ۱۴۰۰

صفحات: ۴۹-۴۱

شاپای چاپی: ۶۴۰۱-۲۵۸۸

شاپای الکترونیکی: ۶۴۱X-۲۵۸۸

وبسایت: shaajournal.msrt.ir

تاریخ ارسال: ۱۴۰۰/۰۳/۱۷

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۱۱/۱۹

نشر آنلاین: ۱۴۰۱/۰۲/۲۰

در این پژوهش طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون به عنوان تکنیکی غیرمخرب برای بررسی عیوب و تغییرات چگالی الکترونی ناشی از تابش نوترون سریع مورد استفاده قرار گرفته است. نانوپودرهای فریت نیکل به روش سل-ژل تهیه و در دمای  $300^{\circ}\text{C}$  پخت داده شدند. اندازه‌گیری‌های پراش پرتو ایکس (XRD) و تصویربرداری با میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، تشکیل نانوذرات تکفاز فریت نیکل را تایید کردند. به منظور بهبود ویژگی‌ها و همچنین بررسی اثرات تابش نوترون، نانوپودرهای تهیه شده تحت تابش نوترون سریع حاصل از چشمه همسانگرد  $^{241}\text{Am} - ^9\text{Be}$  با آهنگ دوز  $125 \mu\text{Sv/h}$  قرار گرفتند. نانوپودرها، دوزهای تابشی کل  $21 \text{ mSv}$  و  $42 \text{ mSv}$  به ترتیب برای یک، دو و سه هفته تابش‌دهی دریافت کردند. اثرات تابش بر روی ویژگی‌های ساختاری و ایجاد عیوب در نمونه‌ها، با استفاده از اندازه‌گیری‌های پراش پرتو ایکس (XRD) و طیف سنجی طول عمر پوزیترون (PLS) از نمونه‌های تابش داده نشده و تابش داده شده بررسی شد. پراش پرتو ایکس نشان داد که با افزایش دوز تابشی دریافتی قله‌های پراش پرتو ایکس پهن‌تر شده و شدت‌شان کاهش می‌یابد که نشان دهنده کاهش اندازه بلورک در نمونه می‌باشد. پارامترهای PALS ( $I_{\tau}$ ،  $I_{\tau}$ ،  $I_{\tau}$ ،  $\tau_{\tau}$ ،  $\tau_{\tau}$ ،  $\tau_{\tau}$ ) نشان دادند که تابش نوترون سریع بر میزان و غلظت عیوب نوع حفره تأثیر می‌گذارد. همچنین مشخص شد که تابش نوترون سریع برای نمونه مورد بررسی باعث جوش خوردن نانوذرات به یکدیگر شده و نوعی بازآرایی و مقاومت تابشی در نمونه دیده شد.



سجاد حساری پور



سید مرتضی عسگریان



زهره کارگر

واژگان کلیدی: تابش، نوترون سریع، پراش پرتو ایکس، طیف سنجی طول عمر پوزیترون، عیوب، فریت نیکل.

### نویسندگان:

۱. بخش فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شیراز، شیراز، ایران.

ایمیل: shpphys@gmail.com

تلفن: ۰۹۱۶۹۷۳۷۱۳۴

۲. بخش فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شیراز، شیراز، ایران.

ایمیل: asgarian@shirazu.ac.ir

تلفن: ۰۷۱۳۶۱۳۷۰۱۲

۳. بخش فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شیراز، شیراز، ایران.

ایمیل: kargar@shirazu.ac.ir

تلفن: ۰۷۱۳۶۱۳۷۰۱۲

\*. نویسنده مسئول



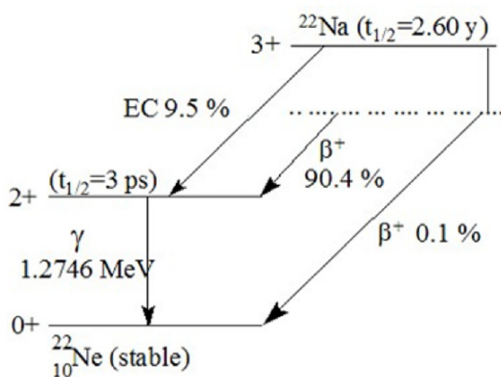
## ۱- مقدمه

نابودی خواهد داشت. هر مولفه طول عمر  $(\tau_1, \tau_2, \tau_3)$  یک شدت متناظر  $(I_1, I_2, I_3)$  وابسته به تعداد رخ داده‌های نابودی دارد. طول عمر نابودی پوزیترون برابر با مدت زمانی است که پوزیترون درون ماده صرف می‌کند تا نابود شود که تابعی از چگالی الکترونی در محل نابودی می‌باشد و به صورت رابطه زیر داده می‌شود [۳]:

$$\lambda = \frac{1}{\tau} = \pi r_e^2 c \int |\psi^+(\mathbf{r})|^2 n_-(\mathbf{r}) \gamma[n_-(\mathbf{r})] d\mathbf{r} \quad (1)$$

که در این رابطه  $\tau$  طول عمر نابودی پوزیترون،  $\lambda$  آهنگ نابودی پوزیترون،  $r_e$  شعاع کلاسیکی الکترون،  $c$  سرعت نور و  $r$  بردار موقعیت الکترون است. همچنین تابع همبستگی  $\gamma = \gamma[n_-(\mathbf{r})] = 1 + \Delta n_- / n_-$  بیان‌کننده افزایش در چگالی الکترون  $\Delta n_-$  به دلیل برهمکنش کولنی بین پوزیترون و الکترون می‌باشد.

در طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون، طول عمر نابودی پوزیترون از اختلاف زمانی بین گسیل گامای  $1274 \text{ keV}$  تولید شده تقریباً همزمان با گسیل پوزیترون مطابق شکل ۱ در ایزوتوپ  $^{22}\text{Na}$  (چشمه تولید پوزیترون) و یکی از گاماها  $511 \text{ keV}$  حاصل از نابودی زوج الکترون-پوزیترون به دست می‌آید. با تحلیل طیف حاصل از نابودی پوزیترون می‌توان به ساختار عیوب در مواد پی برد.



شکل ۱: نمایشی از واپاشی چشمه  $^{22}\text{Na}$  [۳].

فریت نیکل ( $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ) از لحاظ مغناطیسی جزء دسته فریت‌های نرم است که به دلیل مقاومت الکتریکی بالا و وادارندگی مغناطیسی پایین در هسته‌های ترانسفورماتورها، وسایل ارتباطی و ژنراتورها مورد استفاده قرار می‌گیرد [۵]. فریت نیکل دارای تقارن مکعبی و ساختار FCC می‌باشد. از نظر بلورشناسی این فریت‌ها دارای ساختار اسپینلی هستند که از آنیون‌های اکسیژن تشکیل

از تفاوت‌های عمده بین نوترون‌ها (یا هر ذره خنثی دیگر) و ذرات باردار این است که نوترون‌ها انرژی خود را از طریق برهمکنش‌های الکترومغناطیسی با اتم‌های مواد از دست نمی‌دهند. از این رو، در مقایسه با ذرات باردار آن‌ها می‌توانند عمیق‌تر در ماده نفوذ کنند. این قابلیت نفوذ زیادتر برای توسعه حفاظ‌های تابشی موثر در اطراف چشمه‌های نوترون مانند رآکتورهای هسته‌ای مشکل‌ساز است. با این حال، نفوذ عمیق‌تر نیز دارای مزایایی است. به عنوان مثال، باریکه نوترون می‌تواند برای آزمایش غیرمخرب مواد استفاده شود [۱]. تابش با انرژی کافی با غلبه بر پیوند کووالانسی می‌تواند به طور دائم مولکول را به اتم‌ها و رادیکال‌های تشکیل‌دهنده‌اش تجزیه کند. از این رو، ترکیب شیمیایی مواد می‌تواند به طور اساسی تغییر کند. یکی از روش‌های با ارزش و غیرمخرب در زمینه مطالعه مواد، طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون (PALS) در ماده است که می‌تواند اطلاعاتی در مورد غلظت عیب، چگالی الکترونی و نوع عیب ارائه نماید. اولین بار در دهه ۱۹۴۰ میلادی نابودی پوزیترون با الکترون‌ها مورد بررسی قرار گرفت. در اواخر ۱۹۶۰ دانشمندان دریافته‌اند که پارامترهای نابودی به عیوب شبکه حساس‌اند. پوزیترون به داخل مواد نفوذ می‌کند و درون عیوب آن‌ها به دام می‌افتد یعنی تابع موج پوزیترون در جایگاه عیوب در شبکه جایگزیده می‌شود تا نابود شود. علاوه بر این، پوزیترون‌ها حساسیت خاصی به عیوب حجم باز  $^1$  در جامدات به دلیل نبود یون مثبت (حذف یون) و دافعه ناشی از یون مثبت دارند. این عیوب به شکل پتانسیل منفی پوزیترون را جذب می‌کنند.

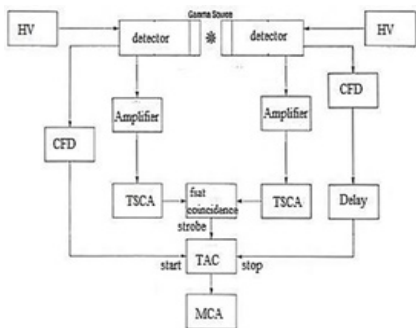
پوزیترون‌ها قبل از جذب به وسیله عیوب با حجم باز مانند تهی جاها<sup>۱</sup>، توده‌های تهی<sup>۲</sup> و ناچابجایی‌ها و نابودی در آن‌ها، در جامد پخش می‌شوند [۲] و [۳]. وقتی که پوزیترون در یک عیب حجم باز به دام می‌افتد، پارامترهای نابودی نسبت به حالتی که پوزیترون در نمونه‌های بدون عیب نابود می‌شود، به شکل قابل ملاحظه‌ای تغییر می‌کنند. در عیوب حجم باز به خاطر چگالی الکترونی کمتر، طول عمر نابودی پوزیترون افزایش می‌یابد. کشف و شناسایی مستقیم عیوب از جمله تهی جاها و غیرمخرب بودن از مزیت‌های اصلی طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون در مواد است [۴]. پوزیترون گسیل شده از چشمه پوزیترون مانند، پس از اینکه وارد ماده جامد می‌شود انرژی خود را از دست می‌دهد و شروع به پخش شدن در جامد می‌کند که می‌تواند تا عمق چند صد میکرومتر پخش شود. پوزیترون در طی فرآیند پخش ممکن است در عیوب به دام بیافتد که حالت به دام افتادن در عیوب، منجر به افزایش طول عمر آن می‌گردد. علاوه بر این، ممکن است پوزیترون برای تشکیل اتم پوزیترونیم (Ps) با دو حالت تکتایی (para-Ps) و حالت سه‌تایی (ortho-Ps)، یک الکترون از مواد مجاور را جدا کند. در هر دو مورد، پوزیترون نهایتاً با یک الکترون نابود خواهد شد و یک طول عمر متناظر برای هر جایگاه

<sup>۱</sup>Open volume defects

<sup>۲</sup>Vacancies

<sup>۳</sup>Vacancy clusters

آلودگی نمونه‌های مورد اندازه‌گیری، در لایه نازکی از میلار به ضخامت  $7 \mu\text{m}$  پوشانده شد. برای اینکه مطمئن شویم تمام پوزیترون‌ها در نمونه‌ها نابود می‌شوند، در هر دو طرف چشمه به مقدار کافی از نانوپودر مورد نظر قرار داده شد. طیف‌های طول عمر نابودی پوزیترون با مقدار شمارش بیش از یک میلیون شمارش در ۱۲ ساعت اندازه‌گیری شدند.



شکل ۳: دیاگرام سیستم طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون استفاده شده در این پژوهش [۹].

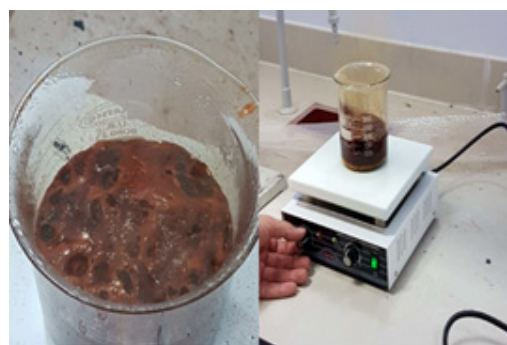
مولفه‌های طول عمر نابودی پوزیترون و شدت‌های آن‌ها با استفاده از نرم افزار پاسکوال (PASQUAL) از طیف‌های طول عمر پوزیترون به دست می‌آیند. هر طیف طول عمر نابودی پوزیترون نموداری است که شامل زمان‌های نابودی پوزیترون‌های مجزا در ماده است. به عبارت دیگر، طیف طول عمر نابودی پوزیترون یک منحنی واپاشی متشکل از تعدادی مولفه‌های واپاشی نمایی، هر یک با طول عمر و شدت متفاوت ( $I_i$  و  $\tau_i$ ) می‌باشد. هدف از یک برنامه تحلیل نابودی پوزیترون حل مسئله وارون استخراج طول عمر و وزن‌ها نسبی مولفه‌های تشکیل دهنده طیف از داده‌های تجربی می‌باشد. این حل می‌تواند یا با تجزیه مستقیم طیف یا از طریق برازش یک مدل تئوری به داده‌های تجربی انجام شود [۱۰]. پاسکوال مسئله وارون را از طریق برازش یک مدل به داده‌های تجربی حل می‌کند. مدل شامل یک شبیه‌سازی طیف طول عمر نابودی پوزیترون از مجموعه‌ای از پارامترهای آزاد است که به طور خودکار تغییر می‌کنند تا طیف محاسبه شده با طیف تجربی منطبق شود. برنامه پاسکوال، انتخاب الگوریتم‌های برازش مختلف را فراهم می‌کند. در ابتدا کاربر یک طیف یا بیشتر را وارد برنامه می‌کند سپس ناحیه‌ای از طیف را که باید برازش شود را انتخاب کرده و تعداد مولفه‌هایی که باید در تحلیل وارد شوند و حدس‌هایی اولیه، برای این مولفه‌ها را وارد می‌کند. آنگاه برازش را شروع می‌کند. اگر نتیجه رضایت بخش نباشد، حدس‌های اولیه و یا تعداد مولفه‌ها را اصلاح می‌کند و دوباره برازش را تکرار می‌کند [۱۱]. با اجرای نرم افزار پاسکوال برای پنج مولفه با مقادیر اولیه ۲۰۰، ۳۰۰، ۴۲۰، ۱۵۰۰ و ۴۰۰۰ پیکوثانیه (مولفه‌های ۳۰۰ و ۱۵۰۰ پیکوثانیه هر دو با شدت ۲ درصد تصحیحات چشمه بودند) و اجرای نرم افزار، بهترین نتایجی که با داده‌ها و شرایط آزمایشگاهی منطبق باشد برای مولفه‌ها به دست آمد. انحراف طیف برازش از طیف تجربی ( $X^2$  یا  $\chi^2$ ) در همه طیف‌های طول عمر نابودی

شده‌اند و این آنبون‌ها دو نوع حفره کاتیونی متفاوت به نام جایگاه‌های چهار وجهی (A) و جایگاه‌های هشت وجهی (B) در ساختار اسپینل ایجاد کرده‌اند [۶]. تکنیک‌های ساخت زیادی از قبیل روش سل ژل [۷] برای به دست آوردن ذره‌های بلوری خالص فریت نیکل با ابعاد نانومتر به کار برده شده است. در این پژوهش برای تهیه نانوذرات از روش سل ژل به دلیل ویژگی‌هایی از جمله، تولید ذرات همگن با اندازه بسیار ریز، رسیدن به خلوص بالا در زمان نسبتاً کوتاه و کنترل دقیق عنصرسنجی در تولید ماده نهایی استفاده شده است.

## ۲- بخش تجربی

### ۲-۱- تهیه نانوپودرهای فریت نیکل

برای تهیه نانوپودرهای فریت نیکل ( $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ) مواد اولیه شامل نیترات نیکل  $[\text{Fe}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}]$  و نیترات آهن  $[\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}]$  به نسبت‌های استوکیومتری معین به همراه اسید سیتریک  $[\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}]$  در  $300^\circ\text{C}$  میلی‌لیتر آب مقطر حل شدند. محلول حاصل با همزن مغناطیسی در طی حرارت دهی، همزده شد تا به ژل تبدیل گردید (مطابق شکل ۲). ژل حاصل به مدت ۲۴ ساعت در خشک کن در دمای  $100^\circ\text{C}$  درجه سانتی گراد قرار داده شد تا خشک شود و در انتها برای تهیه نانو پودر فریت نیکل در دمای  $300^\circ\text{C}$  به مدت ۲ ساعت پخت داده شد. نمونه‌های تهیه شده به مدت یک هفته (دوز کل تابش دریافتی  $21 \text{ mSv}$ )، دو هفته (دوز کل تابش دریافتی  $42 \text{ mSv}$ ) و سه هفته (دوز کل تابش دریافتی  $63 \text{ mSv}$ ) تحت تابش نوترون سریع حاصل از چشمه همسانگرد  $^{241}\text{Am}-^9\text{Be}$  مستقر در آزمایشگاه هسته‌ای دانشگاه شیراز با آهنگ دوز  $125 \mu\text{Sv/h}$  قرار داده شدند.



شکل ۲: تصویری از ژل تهیه شده به همراه دستگاه همزن مغناطیسی.

### ۲-۲- تست‌های صورت گرفته بر روی نانوپودرها

#### ۲-۲-۱- طیف سنجی طول عمر پوزیترون (PLS)

برای اندازه‌گیری طول عمر نابودی پوزیترون از یک مدار همزمانی سریع- کند با رزولوشن زمانی  $250$  پیکوثانیه برای گاما‌های چشمه  $^{60}\text{Co}$  استفاده شد. مدار مورد استفاده برای اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون در شکل ۳ نشان داده شده است و در مراجع [۸ و ۹] به طور کامل توضیح داده شده است. چشمه مورد استفاده دارای اکتیویته  $20$  میکروکوری بوده و به منظور ممانعت از

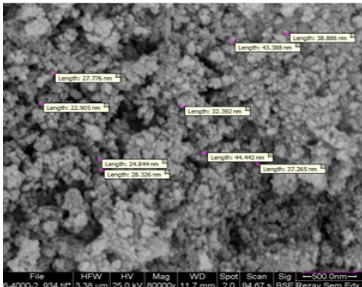


می‌شود. اساس کار SEM برهمکنش پرتوهای الکترونی با نمونه است که باعث گسیل الکترون‌ها و فوتون‌ها از نمونه می‌شود. با استفاده از این دستگاه می‌توان تصاویر بزرگنمایی شده از نمونه‌ها را به دست آورد. تصویر از نمونه تهیه شده در این پژوهش با استفاده از یک SEM مدل LEO-1455 VP گرفته شد.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- بررسی تصاویر میکروسکوپ الکترونی

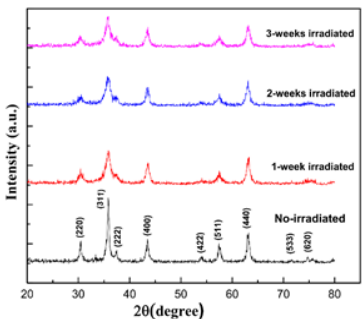
در شکل ۴ تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) برای نانوپودرهای فریت نیکل تهیه شده (تابش داده نشده) نشان داده شده است. با توجه به اعداد روی این تصویر که به عنوان مثال نشان داده شده‌اند، فریت نیکل تهیه شده و بررسی شده در این پژوهش دارای ذراتی با ابعادی کمتر از ۱۰۰ nm می‌باشند.



شکل ۴: تصویر SEM نانوپودرهای فریت نیکل تهیه شده در دمای ۳۰۰ C.

#### ۳-۲- بررسی الگوهای XRD نمونه‌های تابش داده نشده و تابش داده شده با نوترون سریع

در شکل ۵ الگوهای پراش پرتو ایکس قبل و پس از تابش نوترون سریع به نانوپودرهای فریت نیکل نشان داده شده است. الگوهای پراش پرتو ایکس نشان می‌دهند که همه نمونه‌ها تکفاز بوده و دارای ساختار اسپینل می‌باشند و در طی تابش دهی نوترون سریع هیچ فاز دیگری به علت اثرات ناشی از تابش نوترون ایجاد نشده است. پس از تابش نوترون سریع، شدت قله‌های بازتاب (ارتفاع پیک‌ها) و پهنای پیک‌ها (FWHM) در نمونه‌های تابش دیده نسبت به نمونه‌های بدون تابش دچار تغییراتی شده‌اند.



شکل ۵: الگوهای XRD نانوپودرهای فریت نیکل بدون تابش و تابش دیده در هفته‌های (دوزهای) مختلف تابش دهی نوترون سریع.

پوزیترون در محدوده قابل قبول ۰/۹۷ تا ۱/۱۳ به دست آمد. بعد از برازش این طیف توسط نرم افزار پاسکوال، سه مولفه طول عمر نابودی پوزیترون برحسب پیکوتانیبه به ترتیب  $\tau_1$ ،  $\tau_2$  و  $\tau_3$  بدست می‌آیند. همچنین مولفه‌های شدت طول عمر  $I_1$ ،  $I_2$  و  $I_3$  به طور مستقیم به غلظت عیوب مربوط می‌شوند [۹].

#### ۲-۲- پراش پرتو ایکس (XRD)

پراش پرتو ایکس تکنیکی قدیمی و پرکاربرد در بررسی خصوصیات بلورها و نانوپودرها است. XRD برای مشخص کردن کمیت‌های ساختار بلوری از جمله ثابت شبکه، فاز بلورها، اندازه بلورک‌ها، تنش در شبکه و غیره قابل استفاده می‌باشد. اطلاعات به دست آمده از پراش یک بلور شامل زاویه پیک ماکزیمم، شدت نسبی ماکزیمم‌ها و همچنین پهنای هر پیک می‌باشد، این اطلاعات اساس کار XRD را تشکیل می‌دهند. در واقع اساس کار دستگاه XRD، پراکندگی پرتو ایکس از صفحات بلور است. قانون براگ که به صورت رابطه زیر بیان می‌شود، قانون حاکم بر صفحات بلور می‌باشد:

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

در این رابطه d فاصله بین صفحات بلوری،  $\theta$  زاویه پراکندگی مربوطه،  $\lambda$  طول موج پرتو ایکس و در اینجا معمولاً  $n=1$  را انتخاب می‌کنند [۱۲]. اندازه بلورک نمونه‌های مورد بررسی با استفاده از رابطه دبای- شرر،

$$D = \frac{0.89\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (3)$$

محاسبه می‌شود که در این رابطه، D اندازه بلورک‌ها بر حسب نانومتر،  $\beta$  پهنای کامل در نیم بیشینه پیک پراش بر حسب رادیان،  $\lambda$  طول موج پرتو تابش (۱/۵۴۰۶ Å) و  $\theta$  زاویه پراکندگی مربوطه به پیک پراش بر حسب درجه است. اندازه ثابت شبکه نیز طبق رابطه [۴]

$$\frac{1}{d^2} = \left( \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a^2} \right) \quad (4)$$

به فاصله صفحات بلوری مربوط است. در این رابطه a ثابت شبکه، h، k و l اندیس‌های میلر و d فاصله بین صفحات بلوری است [۱۲].

الگوهای پراش پرتو ایکس در این پژوهش برای نمونه‌های قبل و بعد از تابش نوترون سریع، با استفاده از دستگاه پراش سنج پرتو ایکس D8AVANCED Bruker ساخت کشور آلمان، که تابش  $K_{\alpha}$  مس با فیلتر نیکل را به کار می‌برد، در محدوده زاویه‌ای ۸°-۲۰ درجه بر حسب زاویه  $2\theta$  به دست آمده‌اند. طول موج پرتو ایکس این دستگاه ۱/۵۴۰۶ Å است.

#### ۳-۲-۲- میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)

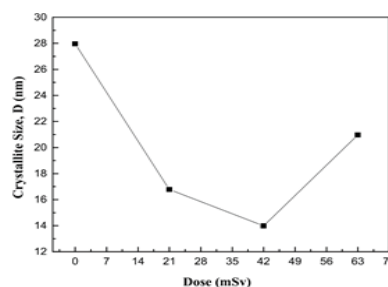
جهت تعیین اندازه و شکل نمونه‌ها از میکروسکوپ الکترونی روبشی استفاده

تغییرات ثابت شبکه بر اثر تابش نوترون سریع را می‌توان ناشی از تغییر توزیع یون‌های آهن و نیکل در جایگاه‌های چهار وجهی و هشت وجهی در نانوفریت‌ها و همچنین تغییر بار کاتیون‌های آهن و نیکل دانست. نوترون‌های سریع با نانوپودرهای فریت نیکل می‌تواند به صورت برهمکنش با عناصر تشکیل‌دهنده نانوپودرها مانند کاتیون‌های آهن و نیکل و آنیون‌های اکسیژن باشد. این نوع برهمکنش می‌تواند منجر به جابه‌جایی عناصر تشکیل‌دهنده و در نتیجه تغییر توزیع کاتیونی در نمونه‌ها شود. برهمکنش دیگر نوترون‌ها با الکترون‌های عناصر می‌باشد که می‌تواند منجر به تغییر بار کاتیون‌ها و آنیون‌ها در نانوپودرهای فریت نیکل گردد. از آنجا که تغییر بار یون‌ها باعث تغییر شعاع یون می‌شود در نتیجه ثابت شبکه تغییر خواهد کرد. به عنوان مثال تبدیل کاتیون  $Fe^{2+}$  به کاتیون  $Fe^{3+}$  و بالعکس در طی برهمکنش تابش با فریت‌ها بسیار گزارش شده است [۴ و ۱۴]. از آنجا که کاتیون  $Fe^{2+}$  شعاع کاتیونی بزرگ‌تری ( $0.74 \text{ \AA}$ ) در مقایسه با کاتیون  $Fe^{3+}$  ( $0.64 \text{ \AA}$ ) دارد [۶]، این تبدیل می‌تواند باعث رشد ثابت شبکه در دوزهای تابشی  $21 \text{ mSv}$  و  $63 \text{ mSv}$  شود. همچنین تابش نوترون سریع در مواد می‌تواند باعث تشکیل تهی‌جا، توده‌های تهی‌جا، عیوب نقطه‌ای و شاخه‌ای، کانال‌های خالی و توده‌های بین‌نشین شود [۱۵]. بنابراین، این تغییرات در اندازه بلورک‌ها و در ثابت شبکه می‌تواند ناشی از ایجاد تهی‌جاها، عیوب نقطه‌ای یا شاخه‌ای بر اثر تابش نوترون سریع در طول دوز تابش‌دهی متفاوت باشد [۱۶]. بنابراین برای بررسی ایجاد حفره‌ها در طی تابش نوترون سریع از نمونه‌ها اندازه‌گیری‌های طول عمر پوزیترون به عمل آمد. افزایش اندازه بلورک‌ها به ازای دوز  $63 \text{ mSv}$ ، می‌تواند نشان‌دهنده این باشد که تابش نوترون سریع باعث جوش خوردن نانوذرات به هم و نوعی بازآرایی یا مقاومت تابشی در طی سه هفته تابش‌دهی شده است [۱۴].

### ۳-۳- بررسی اندازه‌گیری‌های طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون در نمونه‌های تحت تابش نوترون سریع

در شکل ۸ طیف‌های طول عمر نابودی پوزیترون برای نانوپودرهای فریت نیکل تهیه شده و تابش داده شده با نوترون سریع با آهنگ دوز  $\mu\text{Sv/h}$  ۱۲۵ به مدت یک، دو و سه هفته در دوزهای مشخص، رسم شده‌اند. با توجه به این شکل، اثرات تابش نوترون سریع را نسبت به نمونه تابش داده نشده (No-irradiated) به وضوح در بازه بزرگنمایی شده می‌توان ملاحظه کرد. همان طور که مشاهده می‌شود، در قسمت میانی طیف طول عمر نابودی پوزیترون تغییراتی بر اثر تابش نوترون سریع ایجاد شده است.

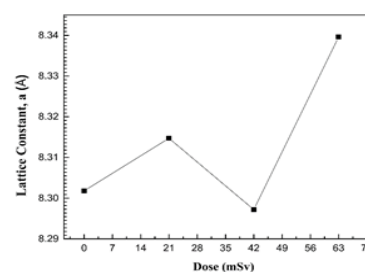
مطابق الگوهای شکل ۵، تابش نوترون سریع باعث شد که پهنای پیک‌ها در نیم بیشینه (FWHM) برای نمونه‌های تابش دیده بیشتر از نمونه تابش ندیده باشد و برای تابش‌دهی در دو هفته اول (دوزهای دریافتی  $21 \text{ mSv}$  و  $63 \text{ mSv}$ ) افزایش پهنای پیک بیشتر از هفته سوم (دوز دریافتی  $63 \text{ mSv}$ ) می‌باشد. با توجه به رابطه دبی-شرر (رابطه (۲))، پهنای پیک ( $\beta$ ) با اندازه نانوبلورک‌ها ( $D$ ) رابطه عکس دارد و هر چه پهنای پیک بزرگ‌تر شود اندازه نانو بلورک‌ها کاهش می‌یابد. شکل ۶ نمودار تغییرات اندازه بلورک نانوپودرهای فریت نیکل را بر حسب دوز تابشی نشان می‌دهد. میانگین اندازه بلورک‌ها برای نمونه تهیه شده (تابش داده نشده) طبق رابطه دبی-شرر برابر  $27/96$  نانومتر به دست آمده است که کاملاً نزدیک به مقادیر نشان داده شده در تصویر SEM در شکل ۴ می‌باشد.



شکل ۶: نمودار اندازه نانوبلورک‌ها  $D$  بر حسب میزان دوز تابش دریافتی نوترون سریع.

مطابق شکل ۶ برای نانوپودر فریت نیکل، با افزایش دوز تابش‌دهی تا  $63 \text{ mSv}$  اندازه نانوبلورک‌ها کاهش می‌یابد ولی با افزایش بیشتر دوز این کاهش کمتر بوده است. کاهش اندازه بلورک بر اثر تابش نوترون سریع، ناشی از برهم خوردن نظم بلورین در سطح نانوذرات می‌باشد. پژوهش‌ها نشان داده است که نانوذرات مغناطیسی از یک لایه مرده از لحاظ مغناطیسی که نظم بلورین ندارد و یک هسته مغناطیسی با نظم بلورین تشکیل شده است [۱۳]. تابش نوترون سریع و برهمکنش آن با نانوذرات باعث بزرگ‌تر شدن لایه مرده و بی‌نظم سطحی از لحاظ بلورین و کوچک‌تر شدن هسته بلورین نانوذرات شده است. افزایش اندازه بلورک برای نمونه‌های تابش دیده به مدت ۳ هفته می‌تواند ناشی از جوش خوردن نانوبلورک‌ها به یکدیگر بر اثر تابش و در نتیجه رشد اندازه بلورک‌ها باشد.

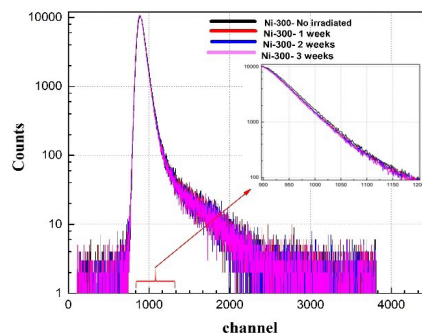
از طرفی دیگر مطابق شکل ۷ به استثنای نمونه تابش دیده با دوز  $63 \text{ mSv}$  ثابت شبکه  $a$  افزایش یافته است و مقدار ثابت شبکه بین  $8/297 - 8/339$  آنگستروم به دست آمده است.



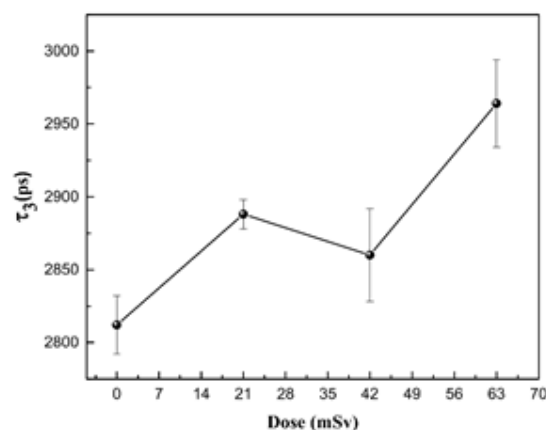
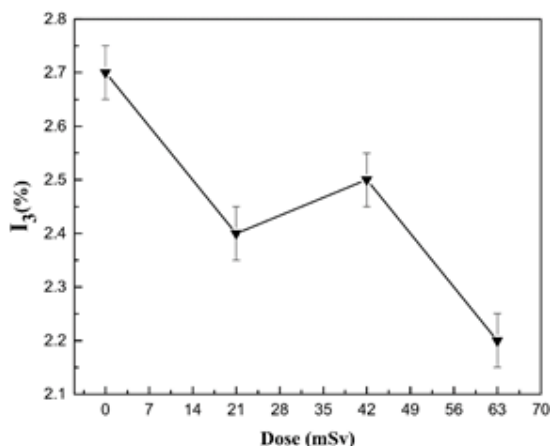
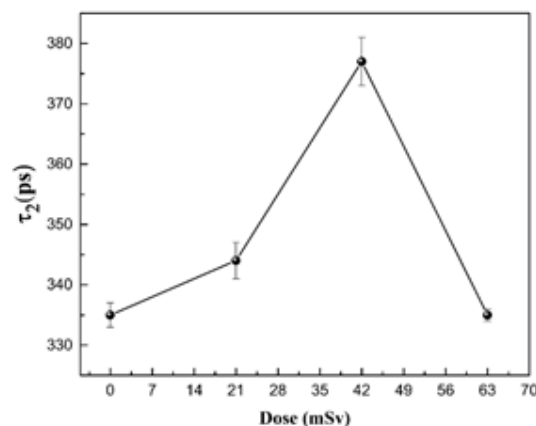
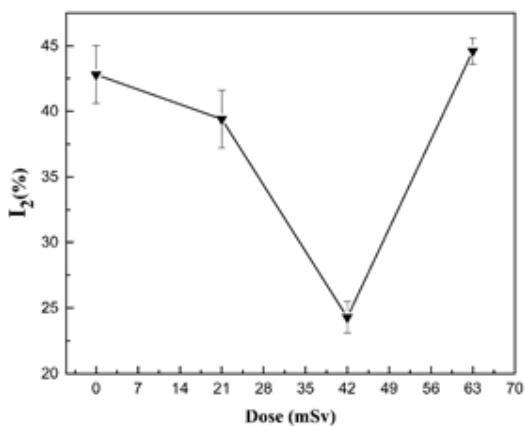
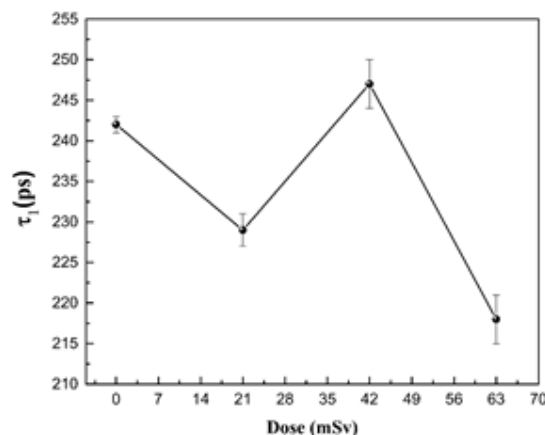
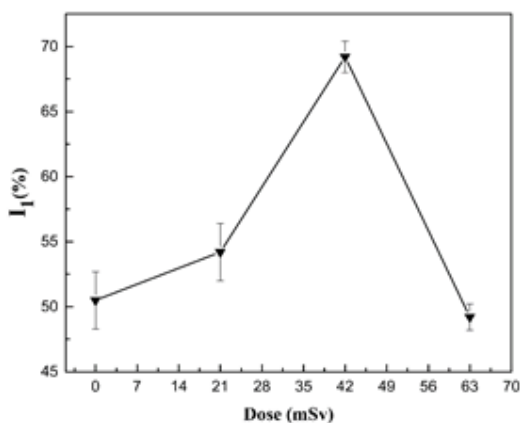
شکل ۷: نمودار اندازه ثابت شبکه  $a$  بر حسب دوز تابش‌دهی نوترون سریع.



مولفه های طول عمر به دست آمده از این نمودارها با استفاده از نرم افزار پاسکوال به دست آمدند که معکوس شیب خط های مماس شده بر این منحنی ها می باشند. مقادیر مولفه های طول عمر و شدت های به دست آمده ما از طیف های طول عمر نابودی پوزیترون برای نمونه های تحت تابش نوترون سریع در محدوده مقادیر گزارش شده در سایر پژوهش های صورت گرفته بود [۶، ۹، ۱۷]. در شکل ۹ نمودار مولفه های طول عمر  $\tau_1$ ،  $\tau_2$  و  $\tau_3$  در شکل ۱۰، شدت های این مولفه ها  $I_1$ ،  $I_2$ ،  $I_3$  برای نانوپودرهای فریت نیکل تابش داده شده با نوترون سریع رسم شده است.



شکل ۸: طیف طول عمر نابودی پوزیترون نانوپودرهای فریت نیکل تحت تابش نوترون سریع.



شکل ۹: تغییرات شدت مولفه های طول عمر نابودی پوزیترون بر حسب دوز تابش دهی نوترون سریع.

شکل ۱۰: تغییرات مولفه های طول عمر نابودی پوزیترون بر حسب دوز تابش دهی نوترون سریع.



نابودی پوزیترونیوم در ماده از طریق فرآیند pick-off با الکترونی از محیط (غیر از الکترونی که در تشکیل پوزیترونیوم شرکت دارد) باعث می‌شود زمان طول عمر اورتوپوزیترونیوم به چندین نانو ثانیه کاهش یابد. در واقع این مولفه طول عمر نابودی پوزیترون ناشی از نابودی پوزیترون‌ها در فضای بین نانوپودرها و با الکترونی از سطح نانوپودرها می‌باشد [۱۷].

#### ۴ - نتیجه‌گیری

با توجه به پخت دادن نمونه‌ها در دمای  $300^{\circ}\text{C}$ ، قرار دادن این نمونه‌ها تحت تابش نوترون سریع، بررسی الگوهای پراش پرتو ایکس و استفاده از تکنیک غیرمخرب طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون، تغییرات حاصل شده در نمونه‌ها به میزان دوز تابش نوترون سریع در مدت زمان مختلف نسبت داده شده است. نتایج حاصل از تابش‌دهی، تغییرات در ثابت شبکه و اندازه نانوبلورک‌ها را نشان می‌دهد. تغییرات ثابت شبکه در نمونه‌های تابش دیده بر اثر تابش نوترون سریع به تبدیل یون‌های کوچک  $\text{Fe}^{2+}$  به یون‌های با اندازه بزرگتر  $\text{Fe}^{3+}$  و بالعکس نسبت داده شد. همچنین تابش نوترون سریع توده‌های تهی‌جا و عیوب نقطه‌ای در نمونه‌های تحت تابش ایجاد می‌کند و عیوب ایجاد شده به عنوان مراکز به دام انداختن پوزیترون‌ها عمل می‌کنند. رشد ثابت شبکه و افزایش اندازه بلورک‌ها در دوز تابشی  $63\text{ mSv}$  برای تابش نوترون سریع در دمای  $300^{\circ}\text{C}$  نشان دهنده این بود که نانوذرات فریت نیکل پخت داده شده در این دما مقاومت تابشی بیشتری داشته‌اند و با نتایج حاصل از اندازه‌گیری طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون نیز تأیید شد.

#### ۵- منابع

- [1]. Ahmed, S. N. (2015). *Physics and engineering of radiation detection*, Academic Press, Laurentian University Sudbury, Ontario, Canada.
- [2]. Karwasz, G. P., Zecca, A., Brusa, R. S., & Pliszka, D. (2004). Application of positron annihilation techniques for semiconductor studies. *Journal of alloys and compounds*, 382(1-2), 244-251.
- [3]. Krause-Rehberg, R., & Leipner, H. S. (1999). *Positron annihilation in semiconductors: defect studies*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg.
- [4]. Hassan, H. E., Sharshar, T., Hessien, M. M., & Hemeda, O. M. (2013). Effect of  $\gamma$ -rays irradiation on Mn-Ni ferrites: structure, magnetic properties and positron annihilation studies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 304, 72-79.
- [5]. Wohlfarth, E. P. (Ed.). (1980). *Ferromagnetic Materials: A Handbook on the Properties of Magnetically Ordered*

مولفه  $\tau_1$  مربوط به نابودی پوزیترون‌ها در قسمت‌های بدون عیب شبکه در نانوپودرها و مولفه  $\tau_2$  ناشی از نابودی پوزیترون‌ها در عیوب مانند حفره‌ها در نانوپودرها می‌باشد [۹، ۱۷]. با توجه به این نمودارها، با تابش نوترون سریع به نمونه‌ها در هفته اول (دوز تابشی  $21\text{ mSv}$ )، مولفه  $\tau_1$  نسبت به نمونه تابش داده نشده کاهش یافته و با افزایش مدت زمان تابش‌دهی به دو هفته (دوز  $42\text{ mSv}$ ) این مولفه نیز افزایش می‌یابد و تقریباً برابر با مولفه بدون تابش می‌شود و شدت  $I_1$  در طول دو هفته تابش‌دهی نیز افزایش یافته از طرفی در این دوزهای تابشی مولفه  $\tau_2$  افزایش یافته و شدت این مولفه یعنی  $I_2$  کاهش یافته است. دلیل افزایش مولفه  $\tau_2$  حفره‌های نسبتاً بزرگی در نانوپودرها است که بر اثر تابش نوترون سریع ایجاد شده‌اند و چون شدت  $I_2$  کاهش یافته بنابراین تعداد این حفره‌ها کم می‌شود. این حفره‌های بزرگ کم، ناشی از کنده شدن یا خروج بعضی از یون‌های فریت نیکل مانند کاتیون‌های  $\text{Fe}^{2+}$  و  $\text{Ni}^{2+}$  از جایگاه‌های شبکه‌ای بر اثر تابش نوترون سریع می‌باشند که این یون‌های خارج شده از شبکه در قسمت‌های دیگر شبکه به صورت بین‌نشین قرار می‌گیرند و باعث می‌شوند چگالی الکترونی قسمت‌های بدون عیب شبکه افزایش یابد. تغییر شدت  $I_1$  به تغییر شدت در  $I_1+I_2+I_3=100$  (مرتبط است چون ۳ درصد) بنابراین هر چه تعداد پوزیترون‌های بیشتری در عیوب به دام بیافتند تعداد پوزیترون‌ها در قسمت‌های بدون عیب نانوپودرها کمتر خواهد شد. همچنین افزایش تعداد الکترون‌هایی که از قسمت معیوب شبکه کنده شده‌اند و به قسمت بدون عیب شبکه آمده‌اند باعث می‌شوند که طول عمر نابودی پوزیترون یعنی مولفه  $\tau_1$  بیشتر کاهش یابد [۸]. در هفته سوم تابش‌دهی (دوز  $63\text{ mSv}$ ) مولفه  $\tau_2$  کاهش یافت و مقدار آن تقریباً برابر با طول عمر نانوپودر فریت نیکل تابش داده نشده شده است و مولفه شدت  $I_2$  نیز افزایش یافته است و تقریباً به مقدار خود در حالت تابش داده نشده رسیده است. کاهش مولفه  $\tau_2$  به دلیل ایجاد حفره‌های کوچک زیاد در اثر تابش نوترون سریع می‌باشد. به ازای دوز تابشی  $63\text{ mSv}$ ، مولفه طول عمر نابودی پوزیترون تقریباً برابر با نمونه تابش داده نشده است و نوعی بازآرایی در عیوب ایجاد شده بر اثر تابش رخ داده است که بیانگر این است که پس از سه هفته تابش‌دهی نمونه نانوپودر بر اثر بازآرایی حفره‌های ایجاد شده در برابر تابش نوترون سریع توزیع حفره‌ها به شرایط پیش از تابش‌دهی بازگشته است که کاملاً با نتایج حاصل از XRD در مقاوم بودن نانوپودرها در برابر تابش سازگار است. مولفه  $\tau_2$  ناشی از نابودی پوزیترون از طریق فرآیندی موسوم به فرآیند pick-off برای اتم اورتوپوزیترونیوم تشکیل شده در حجم‌های آزاد بزرگ در نواحی بین ذرات نانوپودرها می‌باشد. پوزیترونیوم حالت مقید پوزیترون با الکترون می‌باشد و طول عمر آن در حلال  $142$  نانو ثانیه است. اما



- [15]. Mincov, I., & Troev, T. (1991). Positron annihilation in 14 MeV neutron irradiated nickel and nickel containing 25 at% iron. *Physics Letters A*, 154(7-8), 429-432.
- [16]. Knief, R. A. (1981). *Nuclear energy technology: theory and practice of commercial nuclear power*, McGraw-Hill, New York.
- [17]. Kargar, Z., Asgarian, S. M., & Mozaffari, M. (2016). Positron annihilation and magnetic properties studies of copper substituted nickel ferrite nanoparticles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 375, 71-78.
- [6]. Nikmanesh, H., Kameli, P., Asgarian, S. M., Karimi, S., Moradi, M., Kargar, Z., & Salamati, H. (2017). Positron annihilation lifetime, cation distribution and magnetic features of  $\text{Ni}_{1-x}\text{ZnxFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{O}_4$  ferrite nanoparticles. *RSC Advances*, 7(36), 22320-22328.
- [7]. Zhong, W., Ding, W., Zhang, N., Hong, J., Yan, Q., & Du, Y. (1997). Key step in synthesis of ultrafine  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  by sol-gel technique. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 168(1-2), 196-202.
- [8]. Asgarian, S. M. (2016). *Positron lifetime spectroscopy: feasibility study of defects in nanomaterials* (Doctoral dissertation). Physics Department, College of Science, Shiraz University, Iran.
- [9]. Asgarian, S. M., & Kargar, Z. (2019). Positron annihilation lifetime spectroscopy in nickel ferrite and iron oxide nanopowders. *Iranian Journal of Physics Research*, 19(2), 291-301.
- [10]. Pascual-Izarra, C., Dong, A. W., Pas, S. J., Hill, A. J., Boyd, B. J., & Drummond, C. J. (2009). Advanced fitting algorithms for analysing positron annihilation lifetime spectra. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 603(3), 456-466.
- [11]. Kansy, J. (1996). Microcomputer program for analysis of positron annihilation lifetime spectra. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 374(2), 235-244.
- [12]. Cullity, B. D. (1956). *Elements of X-ray Diffraction*, Addison-Wesley Publishing.
- [13]. Muroi, M., Street, R., McCormick, P. G. & Amighian, J. (2001). Magnetic properties of ultrafine  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$  powders prepared by mechanochemical processing, *Physical Review B*, 63(18), 184414.
- [14]. Ahmed, M. A., El-Dek, S. I., Mansour, S. F., & Okasha, N. (2011). Modification of Mn nanoferrite physical properties by gamma, neutron, and laser irradiations. *Solid state sciences*, 13(5), 1180-1186.



## Application of positron lifetime spectroscopy (PLS) and X-ray diffraction (XRD) as measurement tools in investigating the effect of fast neutron radiation on the structural properties of nickel ferrite nanopowders

Sajjad Hasari Pour<sup>1\*</sup>, Seyed Morteza Asgarian<sup>2</sup>, Zohreh Kargar<sup>3\*</sup>

### Article Info:

#### NAISL

Volume 5, Number 2, 2021  
Pages: 41-49  
Print ISSN: 2588-6401  
Online ISSN: 2588-641X  
Website: shaajournal.msrt.ir  
Date Received: 2021/06/07  
Acceptance date: 2022/03/10  
Online publishing: 2022/05/10

### Abstract

In this study, positron annihilation lifetime spectroscopy (PALS) has been used as a non-destructive technique for investigation of defects and changes in electron density due to fast neutron irradiation of nickel ferrite nanopowders. Samples were prepared by sol-gel method and sintered at 300 °C. X-ray diffraction (XRD) measurements and scanning electron microscopy (SEM) imaging confirmed the formation of single-phase nickel ferrite nanoparticles. In order to investigate the effects of neutron irradiation, the prepared nanopowders exposed to fast neutron from <sup>241</sup>Am-<sup>9</sup>Be source of dose rate of 125 μSv/h. The nanopowders received the total irradiation dose of 21, 42 and 63 mSv for one, two and three weeks irradiation, respectively. The effects of radiation on structural properties and defect formation in the samples are investigated using the X-ray diffraction (XRD) and positron annihilation lifetime spectroscopy (PALS) measurements of the unirradiated and the irradiated samples. X-ray diffraction measurements showed that with increase in radiation dose, the X-ray diffraction peaks become wider and their intensities decrease, which indicate decrease in the crystallite size in the samples. The PALS parameters ( $\tau_1$ ,  $\tau_2$ ,  $\tau_3$ ,  $I_1$ ,  $I_2$ ,  $I_3$ ) showed that fast neutrons irradiation affect the size and the concentration of vacant-type defects. It was also found that the fast neutron irradiation caused the nanoparticles to weld together and a kind of rearrangement and radiation resistance is seen in the sample.



Sajjad Hasari Pour



Seyed Morteza Asgarian



Zohreh Kargar

**Key Words:** Irradiation, fast neutron, X-ray Diffraction, Positron Lifetime Spectroscopy, Defects, Nickel Ferrite

#### Authors:

1. Physics Department, College of Science, Shiraz University, Shiraz, Iran.

E-mail: Shpphys@gmail.com

Tel: 09169737134

2. Physics Department, College of Science, Shiraz University, Shiraz, Iran.

E-mail: asgarian@shirazu.ac.ir

Tel: 07136137012

3\*. Physics Department, College of Science, Shiraz University, Shiraz, Iran.

E-mail: Kargar@shirazu.ac.ir

Tel: 07136137012

\*.Corresponding author