การสังเคราะห์แก้วบอโรซิลิเกตจากขี้เถ้าแกลบสำหรับประยุกต์ใช้เป็นแก้วกำบังรังสี
Synthesis of Borosilicate Glass from Rice Husk Ash as Radiation Shielding Materials

สายทอง ก้งทอง[1] ศุภรัตน์ ทัศน์เจริญ[2] และ สุวิมล เรืองศรี[3*]

[1]โปรแกรมวิชาเคมี คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม
[2,3]โปรแกรมวิชาวิทยาศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม
**suwimonn@live.com*

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์เพื่อเตรียมแก้วบอโรซิลิเกตจากขี้เถ้าแกลบ เพื่อใช้ในการกำบังรังสี โดยทำการหลอมแก้วในสูตร xBi_2O_3: (90-x)B_2O_3: 10RHA เมื่อ x คือความเข้มข้นของ Bi_2O_3 ที่ 70, 75, 80 และ 85 wt% ผลที่ได้พบว่าขี้เถ้าแกลบที่ผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 1,000 °C มีปริมาณของ SiO_2 มากที่สุด สามารถผลิตแก้วใสได้ แก้วบอโรซิลิเกตที่เตรียมได้จากขี้เถ้าแกลบในงานวิจัยนี้มีลักษณะใส สีน้ำตาลอมส้ม ผลการทดลองที่ได้พบว่าค่าปริมาตรต่อโมลแปรผกผันกับค่าความหนาแน่น การส่องผ่านแสงของแก้วจากเครื่องยูวี-วิสิเบิลสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ พบว่าที่ความเข้มข้น 75 wt% ให้การส่องผ่านแสงที่ดีที่สุด และศึกษาการกำบังรังสีจากเครื่องแกมมาสเปกโตรมิเตอร์ที่พลังงาน 662 keV จากแหล่งกำเนิด ^{137}Cs ผลที่ได้พบว่าค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนรังสีมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มความเข้มข้นของสาร Bi_2O_3 ซึ่งแสดงให้เห็นถึงสมบัติการกำบังรังสีที่เพิ่มขึ้น ซึ่งผลการทดลองที่ได้สอดคล้องกับค่าทางทฤษฎีที่คำนวณได้จากโปรแกรม WinXCoM ผลการวิจัยครั้งนี้แสดงให้เห็นว่าแก้วบอโรซิลิเกตจากขี้เถ้าแกลบสามารถใช้เป็นวัสดุกำบังรังสีได้ในช่วงความเข้มข้นของ Bi_2O_3 ที่ 75-85 wt%

คำสำคัญ: แก้ว, แก้วบอโรซิลิเกต, ขี้เถ้าแกลบ, รังสี

Abstract

The purpose of this research was to prepare borosilicate glass from rice husk as (RHA) to use as radiation shielding. The glass was molten in the formula of xBi_2O_3: (90-x) B_2O_3: 10RHA, where x was the concentration of Bi_2O_3 at 70, 75, 80 and 85 wt%. The results indicated that the maximum quantify of SiO_2 in ash was found at the temperature of 1,000 °C. The borosilicate glass prepared from rice husk ash in this research was found in orange brown color and had light transmission characteristic. Transmittance percentage from UV-Visble spectrophotometer showed highest transmission at 75% concentration of Bi_2O_3. The study of radiation shielding was study from Gamma rays spectrometer at the energy of 662keV gamma radiated from ^{137}Cs. The results showed that the radiation attenuation coefficient increased while increasing the concentration of Bi_2O_3, which demonstrated increasing radiation shielding properties. The results were consistent with theoretical values calculated from the results of this research by WinXCoM program. From this research, borosilicate glass using rice husk ash can be used as radiation shielding materials at the concentration of Bi_2O_3 in the range 75-85 wt%.

Keywords: Glass, Borosilicate glass, Rice husk ash, Radiation

1. บทนำ

ปัจจุบันประเทศไทยเป็นประเทศเกษตรกรรมที่สามารถผลิตข้าวได้ในอันดับต้น ๆของโลก เมื่อนำข้าวเปลือกมาผ่านกระบวนการสีข้าวส่วนของข้าวเปลือกหรือแกลบจะถูกแยกออกมา จะเห็นได้ว่าแกลบเป็นวัสดุที่เหลือใช้ที่มีปริมาณมากในแต่ละปี[1] เมื่อนำแกลบมาผ่านกระบวนการเผาจะทำให้เกิดของเสียเป็นขี้เถ้าแกลบ มีลักษณะเป็นอนุภาคสีเทาดำ โดยทั่วไปขี้เถ้าแกลบ ที่หลงเหลือจากการเผาวัสดุไม่ใช่สิ่งที่น่าสนใจมากนัก แต่จากการศึกษาองค์ประกอบทางเคมี[2] ของขี้เถ้าแกลบพบว่าขี้เถ้าแกลบมีปริมาณซิลิกาเป็นองค์ประกอบประมาณร้อยละ 70-90 มีความพรุน (Porosity) มาก น้ำหนักเบา มีพื้นที่ผิวมาก มีสมบัติในการดูดซับ (Absorbent) ดีอีกทั้งเป็นฉนวนด้วย ปัจจุบันจึงมีการใช้ขี้เถ้าแกลบเพื่อให้เป็นประโยชน์มากขึ้น ได้แก่ อุตสาหกรรมโลหะ วัสดุก่อสร้างน้ำหนักเบา สารดูดซับน้ำมัน สารปรับปรุงดิน และอื่น ๆดังนั้นการใช้ขี้เถ้าแกลบจึงเป็นการเพิ่มมูลค่าของสิ่งที่เหลือใช้อย่างแท้จริงและลดปัญหาสภาพแวดล้อมจากฝุ่นละอองไปทางหนึ่ง อย่างไรก็ตามเนื่องด้วยในขี้เถ้าแกลบมีปริมาณซิลิกาสูง จึงน่าจะมีความเป็นไปได้ในการพัฒนาเป็นแหล่งซิลิกา (Silica source) สำหรับอุตสาหกรรมแก้วซิลิเกต หรือการหลอมร่วมกับสารที่เป็นตัวทำให้เกิดแก้ว (Glass former)

แก้วบอโรซิลิเกตเป็นแก้วที่มีการใช้ประโยชน์อย่างกว้างขวาง ทั้งการใช้เป็นเครื่องแก้วในห้องปฏิบัติการวิทยาศาสตร์ หรือทำภาชนะสำหรับใช้ในเตาไมโครเวฟ เนื่องจากเป็นแก้วที่มีการเติมบอริคออกไซด์ลงไป ทำให้แก้วนั้นมีค่าสัมประสิทธิ์การขยายตัวเนื่องจากความร้อนต่ำ และทนต่อการเปลี่ยนแปลงความร้อน

จากการศึกษางานวิจัยที่เกี่ยวข้องเช่น ในการนำแกลบไปผลิตเป็นแก้วบอโรซิลิเกต[3] หรือสังเคราะห์แก้วแบเรียมบอเรตจากแกลบสำหรับผลิตเป็นแก้วกำบังรังสี[4]ผู้วิจัยจึงสนใจที่จะสังเคราะห์แก้วบอโรซิลิเกตจากแกลบ โดยใช้แกลบเป็นแหล่งซิลิกา เพื่อพัฒนาเป็นผลิตภัณฑ์แก้วสำหรับการประยุกต์ใช้ประโยชน์ในด้านการกำบังรังสีต่อไป

2. วิธีการทดลอง

2.1 การเผาแกลบ

1. นำตัวอย่างขี้เถ้าแกลบที่เผาธรรมชาติไปเผาที่อุณหภูมิ 400, 600, 800 และ 1,000 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 3 ชั่วโมง
2. นำขี้เถ้าแกลบทุกตัวอย่างไปวิเคราะห์ด้วยเครื่องเอ็กซเรย์ฟลูออเรสเซนส์สเปกโตรมิเตอร์แบบกระจายพลังงาน

2.2 การเตรียมส่วนผสมแก้ว

1. คำนวณสารเคมีที่ใช้ในการหลอมแก้วทั้งหมดโดยใช้สูตรในการคำนวณดังนี้ xBi_2O_3: $(90\text{-}x)B_2O_3$: 10RHA โดยที่ x คือปริมาณ Bi_2O_3 ที่ใส่ลงไปในปริมาณต่าง ๆ ที่อัตราส่วน 70, 75, 80, และ 85 wt% ตามลำดับ ซึ่งเมื่อรวมกันแล้วจะได้สารรวมกันทั้งหมด 100 กรัม และ RHA คือปริมาณของขี้เถ้าแกลบ
2. ชั่งสารเคมีที่ได้จากการคำนวณ
3. ผสมและบดสารแต่ละตัวอย่างให้เป็นเนื้อเดียวกัน

2.3 การหลอมแก้ว

1. หลอมสารตัวอย่างที่อุณหภูมิ 1,200 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 3 ชั่วโมง
2. เทแก้วที่หลอมได้ลงบนพิมพ์เหล็กกล้าไร้สนิม
3. นำไปอบที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 3 ชั่วโมง

2.4 การวิเคราะห์สมบัติทางกายภาพ สมบัติทางแสงและการกำบังรังสี

1. ค่าความหนาแน่น

การหาค่าความหนาแน่นที่อุณหภูมิห้อง ด้วยหลักอาร์คิมิดิส โดยชั่งน้ำหนักของแก้วตัวอย่างในอากาศและน้ำหนักในน้ำ และนำมาคำนวณค่าความหนาแน่นโดยใช้สมการ

คำนวณค่าความหนาแน่นโดยใช้สมการ

$$\rho = \left(\frac{W_a}{W_a - W_b} \right) \times \rho_{H_2O} \text{ g / cm}^3$$

เมื่อ W_a คือ น้ำหนักในอากาศ(กรัม)
W_b คือ น้ำหนักในน้ำ (กรัม)
ρ_{H_2O} คือ ความหนาแน่นของน้ำ = 1 g/ cm^3 ที่อุณหภูมิ 4 องศาเซลเซียส

2. ค่าปริมาตรเชิงโมล

นำค่าความหนาแน่นที่ได้จากวิธีการวิเคราะห์ข้างต้น มาคำนวณหาค่าปริมาตรเชิงโมลโดยใช้สมการ

$$V_M = \frac{M_T}{\rho} \text{ cm}^3\text{/ mol}$$

เมื่อ M_T คือ มวลโมเลกุลรวมของแก้วเนื้อแก้วผสม (g/mol)
ρ คือ ความหนาแน่นที่ได้จากการคำนวณ (g/cm^3)

3. ค่าการส่องผ่านแสงของแก้ว

นำแก้วตัวอย่างมาวิเคราะห์ค่าการดูดกลืนแสงโดยเครื่องยูวี-วิสิเบิลสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ (UV-Visble spectrophotometer) ในช่วงความยาวคลื่น 300–800 นาโนเมตร

4. ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนรังสี

นำแก้วตัวอย่างมาวัดค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนรังสีโดยใช้เครื่องแกมมาสเปกโตรมิเตอร์ และนำผลการทดลองมาคำนวณโดยใช้สมการ

$$\mu_m = \frac{\ell n(I_o / I)}{\rho x} \text{ cm}^2\text{/g}$$

เมื่อ μ_m คือค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวล
I_o คือ ปริมาณรังสีเริ่มต้น
I คือ ปริมาณรังสีที่ความเข้มต่าง ๆ
ρ คือ ความหนาแน่นของแก้ว (g/cm^3)
x คือ ความหนาของชิ้นงาน (cm)

3. ผลการวิจัย

3.1 ผลการวิเคราะห์องค์ประกอบของธาตุในขี้เถ้าแกลบ

จากการวิเคราะห์องค์ประกอบทางเคมีในขี้เถ้าแกลบที่เผาที่อุณหภูมิแตกต่างกัน โดยทำการเผาแกลบที่อุณหภูมิ 400, 600, 800 และ 1,000°C โดยใช้เครื่องเอ็กซเรย์ฟลูออเรสเซนซ์สเปกโตรมิเตอร์แบบกระจายพลังงาน ผลการวิเคราะห์แสดงดังตารางที่ 1 พบว่าขี้เถ้าแกลบทุกตัวอย่างมีปริมาณของ SiO_2 มากที่สุด เมื่อเทียบกับธาตุอื่น ๆ ในขี้เถ้าแกลบ โดยขี้เถ้า

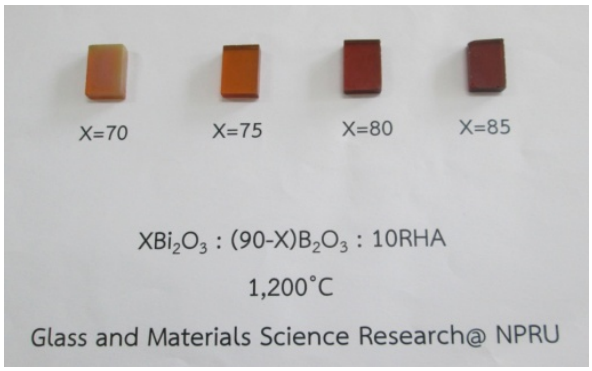
แกลบที่เผาที่อุณหภูมิ 400, 600, 800 และ 1,000˚C มีปริมาณ SiO_2 เป็น 92.541, 94.321, 95.305 และ 95.377 % ตามลำดับโดยจะพบว่าเมื่ออุณหภูมิเพิ่มสูงขึ้นทำให้ซิลิกามีความบริสุทธิ์มากขึ้น นอกจากนี้ยังพบออกไซด์ของธาตุทรานซิชัน เช่น เหล็ก (Fe), แมงกานีส (Mn), ไททาเนียม (Ti), และสังกะสี (Zn) ในปริมาณที่ต่ำ จึงมีความเป็นไปได้ที่จะนำขี้เถ้าแกลบที่ผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 1,000˚C มาเตรียมเป็นวัตถุดิบเพื่อผลิตเป็นแก้วบอโรซิลิเกต เนื่องจากมีปริมาณของ SiO_2 มากที่สุด

ตารางที่ 1 องค์ประกอบของธาตุที่พบในขี้เถ้าแกลบที่ผ่านการเผาที่อุณหภูมิต่าง ๆ

ตัวอย่างธาตุที่พบ (% weight)	400 ºC	600 ºC	800 ºC	1,000 ºC
SiO_2	92.541	94.321	95.305	95.377
P_2O_5	1.406	1.704	1.412	1.752
SO_3	0.265	0.795	0.596	0.295
K_2O	3.822	2.065	1.650	1.387
CaO	1.194	0.694	0.632	0.734
TiO_2	0.014	0.010	0.007	0.014
MnO	0.258	0.231	0.224	0.202
Fe_2O_3	0.278	0.143	0.135	0.194
CuO	-	0.005	0.005	0.009
ZnO	-	0.024	0.025	0.026
BaO	-	0.008	0.010	0.010

3.2 ผลการเตรียมแก้วตัวอย่าง

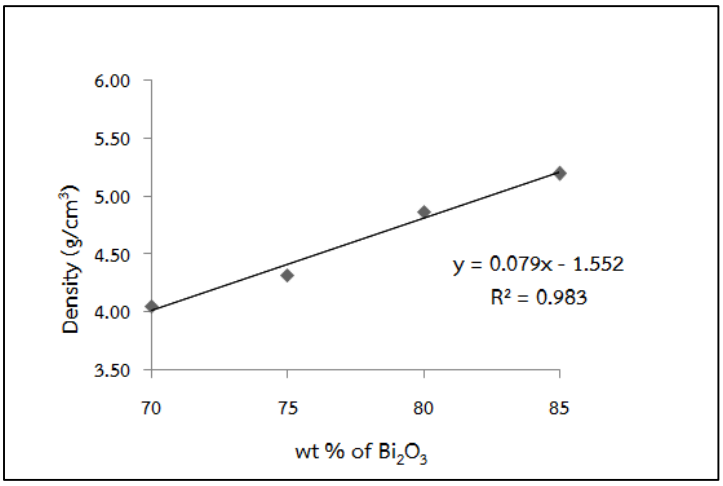
แก้วบอโรซิลิเกตที่ได้จากการหลอมที่อุณหภูมิ 1,200˚C เป็นเวลา 3 ชั่วโมง โดยใช้สูตร xBi_2O_3: $(90\text{-}x)B_2O_3$: 10RHA โดยที่ x คือปริมาณของ Bi_2O_3 ที่ 70, 75, 80, และ 85 wt% แสดงดังภาพที่ 1 จากภาพพบว่าแก้วที่หลอมได้มีลักษณะใส สีน้ำตาล โดยจะพบว่าสีของแก้วที่ได้จากการหลอมจะมีสีที่เข้มขึ้นตามความเข้มข้นของสาร Bi_2O_3 ที่เติมลงไป



ภาพที่ 1 แก้วบอโรซิลิเกตที่ได้จากการหลอมในสูตร xBi_2O_3: $(90\text{-}x)B_2O_3$: 10RHA

3.3 ผลการวิเคราะห์ค่าความหนาแน่น

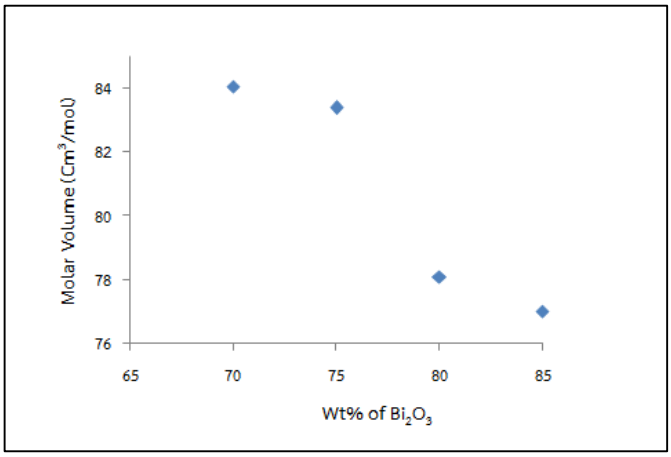
การวิเคราะห์หาค่าความหนาแน่นของแก้วตัวอย่างที่ความเข้มข้น 70, 75, 80, และ 85 wt% พบว่าค่าความหนาแน่นจะเพิ่มขึ้นเมื่อความเข้มข้น Bi_2O_3 เพิ่มขึ้น เนื่องจาก Bi_2O_3 มีความหนาแน่นค่อนข้างสูง คือ 8.9 g/cm^3 เมื่อนำค่าที่วัดได้มาสร้างกราฟแสดงความสัมพันธ์ระหว่างความเข้มข้นของ Bi_2O_3 กับความหนาแน่น จะได้กราฟเส้นตรงตามสมการ $y=0.079x-1.552$ และมีค่า $R^2= 0.983$



ภาพที่ 2 ความสัมพันธ์ระหว่างความหนาแน่นกับความเข้มข้นของ Bi_2O_3

3.4 ผลการวิเคราะห์ค่าปริมาตรเชิงโมล

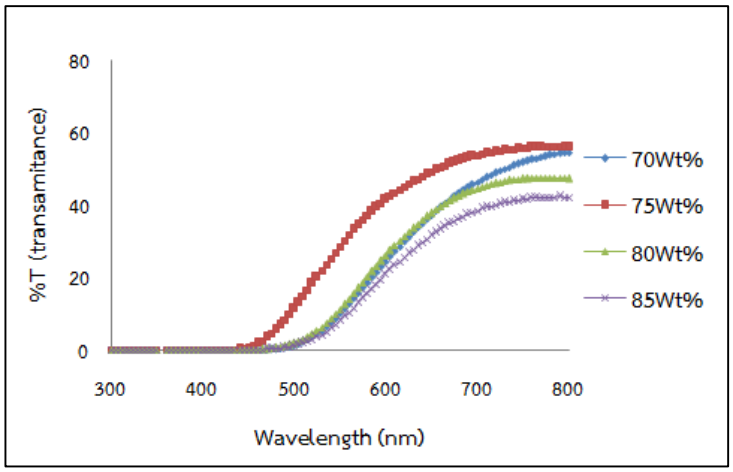
การวิเคราะห์หาค่าปริมาตรเชิงโมลของแก้วตัวอย่างที่ความเข้มข้นของ Bi_2O_3 เป็น 70, 75, 80, และ 85 wt% ได้ผลดังภาพที่ 3 จากพบว่าค่าปริมาตรเชิงโมลจะลดลงเมื่อเพิ่มความเข้มข้นของ Bi_2O_3 แต่ความสัมพันธ์ไม่เป็นเส้นตรงโดยปกติค่าปริมาตรเชิงโมลจะแปรผกผันกับค่าความหนาแน่น โดยถ้าค่าความหนาแน่นเพิ่มขึ้นค่าปริมาตรเชิงโมลจะลดลง เนื่องมาจากในสารปริมาณเท่ากัน ถ้ามีปริมาตรลดลงโครงสร้างมีขนาดเล็ก ส่งผลให้โมเลกุลเกาะกันแน่นมากขึ้น จึงทำให้ค่าความหนาแน่นเพิ่มมากขึ้น แต่ถ้ามีปริมาตรเพิ่มขึ้นโครงสร้างมีขนาดใหญ่ โมเลกุลมีการกระจายตัวเพิ่มขึ้น เกาะกันแน่นน้อยลง ทำให้ค่าความหนาแน่นลดลงไปด้วย



ภาพที่ 3 กราฟแสดงความสัมพันธ์ระหว่างปริมาตรต่อโมลกับความเข้มข้นของ Bi_2O_3

3.5 ผลการวิเคราะห์การส่งผ่านแสงของแก้ว

การวิเคราะห์การส่งผ่านแสงของแก้วตัวอย่างที่ความเข้มข้น 70, 75, 80, และ 85 wt% ตามลำดับ ด้วยเครื่องยูวี-วิสิเบิลสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ (UV-Visble spectrophotometer) ในช่วงความยาวคลื่น 300–800 นาโนเมตร นำค่าที่วัดได้มาสร้างกราฟแสดงความสัมพันธ์ระหว่างค่าการส่งผ่านแสงกับความเข้มข้นของ Bi_2O_3 ดังภาพที่ 4



ภาพที่ 4 กราฟแสดงความสัมพันธ์ระหว่างค่าการส่องผ่านแสงกับความเข้มข้นของ Bi_2O_3

จากสเปกตรัมการส่งผ่านแสงของแก้วในช่วงความยาวคลื่น 300-800 นาโนเมตร พบว่าเมื่อความเข้มข้นของ Bi_2O_3 เพิ่มขึ้นค่าการส่องผ่านแสงเพิ่มมากขึ้น โดยความเข้มข้นที่ 75 wt% จะมีการส่งผ่านแสงที่ดีที่สุด เนื่องแก้วมีความใสมากกว่าที่ความเข้มข้นอื่น ๆ

3.6 ผลการวิเคราะห์หาค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนรังเชิงมวล

การวิเคราะห์ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลใช้วิธีการส่งผ่านรังสีแกมมา โดยการใช้เครื่องแกมมาสเปกโตรมิเตอร์ ซึ่งใช้ต้นกำเนิดรังสีแกมมา คือ ^{137}Cs ที่ระดับพลังงาน 662 กิโลอิเล็กตรอนโวลต์ เวลา 1 ชั่วโมง

ตารางที่ 2 ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนรังสีที่ความเข้มข้นต่าง ๆ

ความเข้มข้น Bi_2O_3 (wt%)	ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากการใช้ SiO_2 บริสุทธิ์(cm^2/g)x10^{-2}	ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากค่าทฤษฎี (cm^2/g) x10^{-2}	ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากการทดลอง (cm^2/g) x10^{-2}
70	0.0946	0.0991	0.0919
75	0.0960	0.1007	0.0930
80	0.0974	0.1024	0.0942
85	0.0987	0.1041	0.1068

จากตารางที่ 2พบว่าที่ความเข้มข้นของ Bi_2O_3 เป็น 70, 75, 80, และ 85 wt% ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากการทดลองอยู่ระหว่าง 0.0919 x10^{-2} ถึง 0.1068 x10^{-2} cm^2/g ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากทฤษฎีอยู่ระหว่าง 0.0991x10^{-2} ถึง 1.041x10^{-2} cm^2/g ตามลำดับ และค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากการใช้ SiO_2 บริสุทธิ์อยู่ระหว่าง 0.0946x10^{-2} ถึง 0.0987x10^{-2} cm^2/g ตามลำดับ โดยค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มความเข้มข้นของสาร Bi_2O_3 ซึ่งผลการทดลองที่ได้ยังสอดคล้องกับค่าทางทฤษฎีที่คำนวณได้จากโปรแกรม WinXCOM[5] ที่ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มความเข้มข้นของสาร Bi_2O_3 และพบว่าค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากการทดลองมีค่ามากกว่าค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลจากการใช้ SiO_2 บริสุทธิ์ เนื่องจากขี้เถ้าแกลบที่ผ่านการเผามีส่วนผสมของเหล็ก (จากตารางที่ 1) ซึ่งเหล็กมีค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลที่สูงส่งผลให้ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลของแก้วเพิ่มขึ้นด้วย

4. สรุปผลการทดลอง

แก้วบอโรซิลิเกตจากขี้เถ้าแกลบสำหรับประยุกต์ใช้เป็นแก้วกำบังรังสี โดยใช้แกลบเป็นแหล่งของซิลิกา สามารถใช้เป็นวัสดุในการกำบังรังสีได้ โดยความเข้มข้นที่เหมาะสมที่สุดในการเตรียมแก้วกำบังรังสี คือที่ความเข้มข้นของ Bi_2O_3 ระหว่าง 75-85 wt% โดยให้ค่าสัมประสิทธิ์การลดทอนเชิงมวลอยู่ในช่วง 0.0930 $x10^{-2}$ ถึง 0.1068 $x10^{-2}$ cm^2/g

5. กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้ได้รับทุนสนับสนุนจากโครงการวิจัยบูรณาการนักศึกษาและอาจารย์ เพื่อการพัฒนาท้องถิ่นและความเป็นเลิศทางวิชาการ สถาบันวิจัยและพัฒนา มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม

6. เอกสารอ้างอิง

[1] **“ข้าว”.**[ออนไลน์] เข้าถึงได้จาก www.riceproduct.org. (8 สิงหาคม 2555).
[2] **“เถ้าแกลบของเหลือใช้สารพัดประโยชน์”**[ออนไลน์] เข้าถึงได้จาก http://www.mtec.or.th/index.phpoptio. (8 สิงหาคม 2555).
[3] Park. J.S and et al. (2009).Alkali borosilicate glass by fly ash from a coal-fired power plant. **Chemosphere**, 74: 320–324.
[4] Sukhpal Singh andet al,(2008).Barium–Borate–Fly ash Glasses: As Radiation Shielding. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, 266: 140–146.
[5] **“XCOM”** [ออนไลน์] เข้าถึงได้จาก http://physics.nist.gov/cgi-bin/Xcom. (25 เมษายน 2556)