

## Ceramiczne podłoże grubowarstwowe jako materiał dla dozymetrii retrospektywnej

**Streszczenie.** *Technologia grubowarstwowa jest szeroko stosowana w wielu urządzeniach elektronicznych. Podstawowym elementem konstrukcyjnym jest podłoże wykonane zazwyczaj z tlenku glinu ( $Al_2O_3$ ). Materiał ten wykazuje dobre właściwości radioluminescencyjne, które pozwalają na wyznaczenie zaabsorbowanej dawki promieniowania jonizującego. Daje to możliwość wykorzystania takich elementów elektronicznych w dozymetrii retrospektywnej.*

**Abstract.** *Thick film technology is widely used in many electronic devices. The basic construction element is a substrate usually made of aluminum oxide ( $Al_2O_3$ ). This material shows good radioluminescent properties which allow the determination of the absorbed dose of ionizing radiation. This makes it possible to use such electronic components in retrospective dosimetry. (A ceramic thick layer substrate as a material for retrospective dosimetry)*

**Słowa kluczowe:** technologia grubowarstwowa, dozymetria retrospektywna, promieniowanie jonizujące.

**Keywords:** thick film technology, retrospective dosimetry, ionizing radiation, optically stimulated luminescence (OSL).

### Wstęp

Promieniowanie jonizujące jest stale obecne w otoczeniu człowieka. Zdecydowana większość pochodzi ze źródeł naturalnych – przede wszystkim z pierwiastków radioaktywnych zawartych w ziemi, skałach i powietrzu. Część promieniowania dochodzi bezpośrednio z kosmosu. Od wielu lat systematycznie wzrasta udział związany z rozwojem cywilizacyjnym. Dzieje się to głównie za sprawą medycyny w której na ogromną skalę wykorzystuje się diagnostykę rentgenowską, tomografię, badania PET, znaczniki radioizotopowe itp. Źródła promieniotwórcze są powszechnie używane w przemyśle, różnych systemach bezpieczeństwa (np. na lotniskach) i badaniach materiałowych. Pozostała część absorbowanej dawki promieniowania pochodzi np. z prób jądrowych dokonywanych w różnych częściach globu. Tylko niewielki przyczynek związany jest z energetyką jądrową. [1,2]

W zdecydowanej większości przypadków promieniowanie to mieści się w dopuszczalnych granicach i nie stanowi zagrożenia dla człowieka. Niekiedy jednak dochodzi do sytuacji nadzwyczajnej, w której do otoczenia dostają się bardzo duże ilości materiałów radioaktywnych i dawki promieniowania przekraczają wielokrotnie dopuszczalny poziom. Może się tak stać wskutek awarii, klęsk żywiołowych lub ataku z wykorzystaniem broni jądrowej.

W takiej nadzwyczajnej i nagłej sytuacji bardzo rzadko dysponujemy odpowiednim sprzętem pomiarowym, który byłby w stanie zarejestrować pochłoniętą dawkę promieniowania. Możemy jednak skorzystać z metod, które określa się wspólnym mianem *dozymetrii retrospektywnej*. Metody te polegają na analizie zmian, jakie zaszły w różnych materiałach pod wpływem promieniowania jonizującego i wyznaczenia na tej podstawie dawki pochłoniętego promieniowania. Najczęściej wykorzystuje się do tych pomiarów zjawisko termoluminescencji (TL) lub optycznie stymulowanej luminescencji (OSL) [3-5]. Główną przeszkodą jest jednak znalezienie odpowiednich materiałów, które wykazują właściwość „zapamiętywania” pochłoniętej dawki i są na tyle powszechne, że można je łatwo znaleźć w sąsiedztwie zdarzenia. Wciąż trwają poszukiwania takich materiałów. Wśród potencjalnych kandydatów są m.in. sól kuchenna [6-8], części składowe telefonów komórkowych [9-13] i inne przedmioty codziennego użytku [14-17].

W pracy przedstawiono wyniki badań, które wskazują, że odpowiednim materiałem dla dozymetrii retrospektywnej wykorzystującej zjawisko OSL mogą być podłoża ceramiczne stosowane w technologii grubowarstwowej. Materiały te są powszechnie stosowane w wielu urządzeniach elektronicznych używanych w przemyśle i gospodarstwach domowych.

### Materiały i metody

Do badań użyto komercyjnie dostępnego podłoża Rubalit 708S firmy CeramTec. Jest to materiał polikrystaliczny zawierający 96%  $Al_2O_3$ . Pozostała część to głównie  $MgO$ ,  $SiO_2$  i  $CaO$  oraz śladowe ilości innych pierwiastków. Próbkę były przygotowane w postaci małych kawałków o rozmiarze 7 x 7 mm.

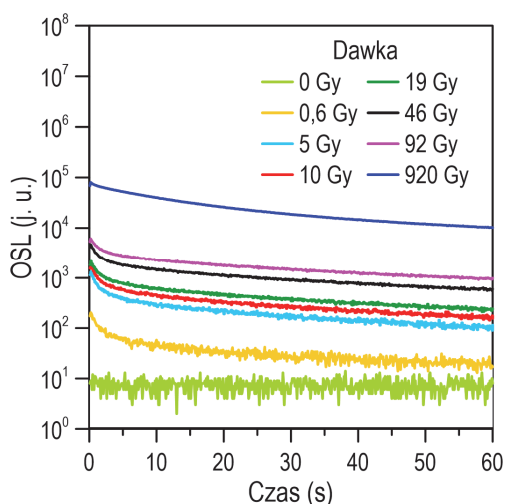
Przed pomiarem próbki były napromieniane różnymi dawkami z użyciem źródła promieniowania beta  $^{90}Sr/^{90}Y$  o aktywności 2,9 GBq. Proces napromieniania przeprowadzany był w ciemności.

Odczyty zaabsorbowanej dawki promieniowania jonizującego dokonywano przy użyciu metody optycznie stymulowanej luminescencji (OSL). W metodzie tej oświetlamy badany materiał za pomocą silnego monochromatycznego światła z zakresu widzialnego lub bliskiej podczerwieni. Równocześnie rejestrowana jest słaba emisja (luminescencja) w zakresie krótkofalowym – zazwyczaj UV. Pomiar OSL może być dokonany w różnych trybach zależnych od sposobu stymulacji. W obecnych pomiarach użyto stymulacji ciągłej (*continuous wave optically stimulated luminescence*, CW-OSL).

Odczyty OSL wykonano przy użyciu czytnika OSL „HELIOS-3” [18-20] (Zero-Rad, Polska). Czytnik składa się z wymiennych modułów do stymulacji w postaci piętnastu diod LED z soczewkami optycznymi. Prąd stymulacji wynosił 10 mA. Długość fali stymulacji odpowiada barwie zielonej (520-532 nm) z filtrami odcinającymi Schott GG495 i OG515. Filtry te praktycznie blokują emisję światła poniżej 500 nm. Detekcja luminescencji dokonywana jest w zakresie UV (300 – 380 nm, filtry Schott UG11) za pomocą zintegrowanego modułu zliczania fotonów H7360 (Hamamatsu) z oknem kwarcowym oraz układem elektronicznego zliczającego impulsy i interfejsu komputera. Dodatkowy fotosensor stosowany jest w celu kontroli emisji diod LED.

## Wyniki i dyskusja

Badany materiał wykazywał wyraźny sygnał OSL. Jest on o wiele niższy od komercyjnych detektorów OSL [5], jednak prosto można go zarejestrować nawet dla niewielkich dawek promieniowania. Na rysunku 1 pokazano zaniki OSL zmierzone dla różnych dawek. Dla porównania pokazano też poziom tła, który był zmierzony bez napromieniania materiału. Pomiary wykonano dla siedmiu dawek – od 0,6 Gy do 920 Gy. Na wykresie przedstawiono tylko zakres pierwszych 60 s pomiaru, jednak czas zaniku, przy założonych parametrach stymulacji optycznej, jest zdecydowanie dłuższy. Siła sygnału OSL podana jest w liczbie zliczeń fotonów w czasie 0,1 s.



Rys.1. Zaniki OSL zmierzone dla siedmiu różnych dawek promieniowania jonizującego zaabsorbowanych przez podłoże Rubalit 708S. Kolorem zielonym oznaczono poziom tła.

Wyjaśnienie zjawiska OSL opiera się na koncepcji pułapek nośników ładunku [3,4]. W każdym dielektryku o budowie krystalicznej istnieją defekty strukturalne związane z obecnością domieszek lub innymi niedoskonałościami sieci (np. wakansy czy położenia międzywęzłowe). Każda taka nierównowaga zaburza strukturę pasmową dielektryka wprowadzając dodatkowe zlokalizowane poziomy energetyczne wewnątrz przerwy wzbronionej. Poziomy te pełnią rolę pułapek i centrów rekombinacji dla większościowych nośników ładunku. Jeżeli odległość energetyczna takiego lokalnego poziomu od pasma przewodnictwa lub pasma walencyjnego jest duża (powyżej 1 eV), to poziom ten może wyłapywać swobodne elektrony lub dziury i przetrzymać je w tym stanie przez bardzo długi czas (nawet tysiące lat).

Podczas ekscytacji (napromieniania) zlokalizowane poziomy energetyczne (pułapki i centra rekombinacji) zostają zapełnione przez elektrony i dziury. Luminescencja może zachodzić w drodze rekombinacji promienistej bezpośrednio pomiędzy elektronami uwięzionymi w pułapkach i dziurami w centrach rekombinacji (tzw. model przejść zlokalizowanych – *localized transitions*, LT) [3,21,22]. Możliwa jest też rekombinacja poprzez pasma zdelokalizowane (STM – *the simple trap model*) [3]. Ten drugi przypadek jest częściej rozważany.

Zewnętrzna stymulacja napromienionego luminoforu jest konieczna, by przyspieszyć proces rekombinacji. Można to zrobić przez podgrzanie materiału do odpowiednio wysokiej temperatury (rzędu 200-300°C) co znacząco zwiększa prawdopodobieństwo uwolnienia elektronów z pułapek i umożliwia ich rekombinację. Mówimy wtedy o zjawisku termoluminescencji (TL).

Innym sposobem uwolnienia elektronów z pułapek jest stymulacja światłem. Zazwyczaj jest to silne światło monochromatyczne z zakresu widzialnego (VIS) lub bliskiej podczerwieni (IR). W czytniku OSL za pomocą filtrów optycznych redukuje się składową stymulacji, rejestrując słabą emisję detektora w zakresie krótszych długości fal – zwykle UV.

Kinetyka wymuszonej rekombinacji może być bardzo złożonym procesem. W najprostszym przypadku, gdy pułapki i centra rekombinacji znajdują się blisko siebie, bezpośrednia rekombinacja prowadzi do bardzo prostej kinetyki. Ubytek liczby elektronów  $n$  na poziomach pułapkowych można przedstawić w formie równania [3,4]:

$$(1) \quad \frac{dn}{dt} = -\alpha n$$

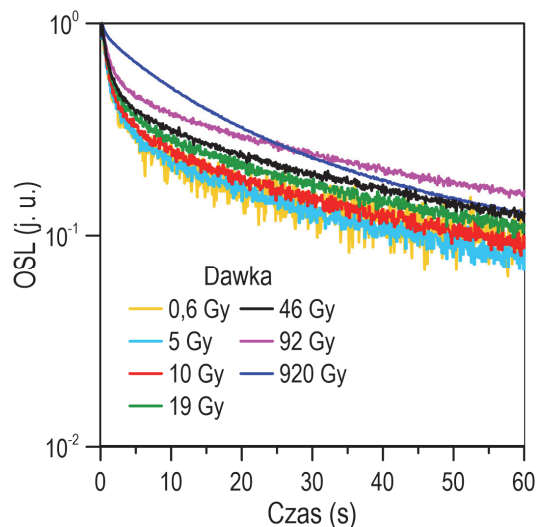
które prowadzi do prostego zaniku wykładniczego:

$$(2) \quad n = n_0 e^{-\alpha t} = n_0 e^{-t/\tau}$$

W powyższych równaniach  $n_0$  oznacza koncentrację elektronów w aktywnych poziomach pułapkowych w chwili  $t=0$ ,  $\alpha$  określa szybkość rekombinacji, którą wygodnie przedstawić w postaci charakterystycznego czasu zaniku –  $\tau = \alpha^{-1}$ . W tym przypadku luminescencja powinna mieć także postać zaniku wykładniczego:

$$(3) \quad \mathcal{L}(t) = -\gamma \Phi \frac{dn(t)}{dt} = A e^{-t/\tau}$$

W powyższym wzorze  $\Phi$  oznacza natężenie strumienia światła, a  $\gamma$  i  $A$  są stałe. Podobną zależność dostaniemy w przypadku przejść zdelokalizowanych przy występowaniu tylko jednego poziomu pułapkowego i jednego typu centrów rekombinacji przy niewielkim udziale tzw. powtórnego pułapkowania aktywnych nośników.



Rys.2. Zaniki OSL prezentowane na rysunku 1 po znormalizowaniu do tej samej wartości początkowej.

Niestety, takie przypadki są stosunkowo rzadkie. Na wykresie półlogarytmicznym – takim jak na rysunku 1 – zanik luminescencji opisanej równaniem (3) powinien być linią prostą, co, jak widać nie zachodzi.

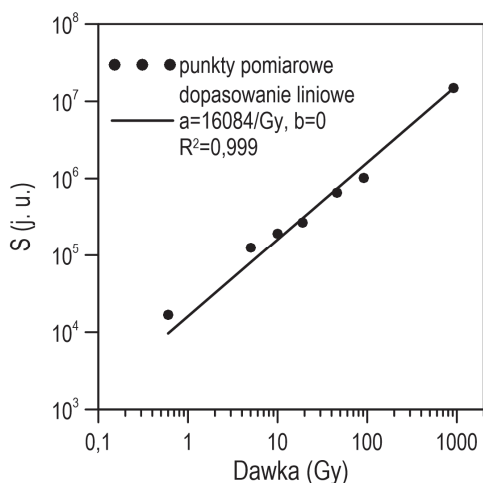
Zmianę charakteru kinetyki rekombinacji najlepiej zaobserwować na wykresie znormalizowanym, co pokazuje rysunek 2. Jak widać, w miarę wzrostu dawki promieniowania luminescencja trwa coraz dłużej i zanik jest

wolniejszy. Kolejna zmiana kinetyki następuje dla dawek bardzo dużych. Dla dawki 920 Gy krzywa OSL zanika początkowo bardzo wolno, później jednak zanik jest znacznie szybszy niż w mniej napromienionych próbkach.

Tak złożony charakter kinetyki luminescencji zapewne nie posiada prostego wyjaśnienia. Prawdopodobnie mamy tu do czynienia z wieloma rodzajami defektów, tworzących zlokalizowane poziomy pułapkowe, które podczas stymulacji optycznej aktywowane są równocześnie dając nieliniowe zależności. Dodatkowo, przy dużym napromienieniu materiału wzrasta prawdopodobieństwo tworzenia się dużych struktur (klasterów) pułapek/defektów.

Brak wiedzy na temat podstawowych procesów zachodzących w materiale nie przeszkadza jednak w wyznaczeniu tzw. odpowiedzi dawkowej materiału, która jest istotna w zastosowaniach dozymetrycznych. Tą odpowiedź możemy wyznaczyć całkując sygnał OSL w ustalonym odcinku czasu.

Na rysunku 3 przedstawiono zależność dawkową dla sygnału OSL scałkowanego w pełnym prezentowanym zakresie, czyli w przedziale 0-60 s. W całym badanym zakresie zależność ta jest liniowa, co ogromnie ułatwia zastosowanie tego materiału do wyznaczenia dawki pochłoniętej przez materiał.



Rys.3. Zależność dawkowa OSL podłoża ceramicznego Rubalit 708S napromienionego promieniowaniem beta w zakresie 0,6 Gy – 920 Gy. Oś pionowa (S) przedstawia wartość sygnału OSL (Rys.1) scałkowanego w przedziale 0-60 s pomniejszonego o tło.

### Podsumowanie

Ceramiczne podłoża grubowarstwowe stosowane są na szeroką skalę w przemyśle i wielu urządzeniach elektronicznych powszechnego użytku. Duże rozpowszechnienie tych urządzeń daje potencjalną możliwość zastosowania tego typu materiałów do celu dozymetrii retrospektywnej.

Konieczność wykorzystania dozymetrii retrospektywnej może mieć miejsce w sytuacji nieprzewidzianego zdarzenia radiacyjnego różnego rodzaju – np. awarii urządzenia zawierającego materiał radioaktywny lub ataku nuklearnego. W takiej sytuacji często nie mamy do dyspozycji profesjonalnych urządzeń dozymetrycznych i musimy korzystać z metod zastępczych w celu oszacowania pochłoniętej dawki promieniowania jonizującego.

W pracy zaprezentowano wyniki wstępnych badań popularnego podłoża stosowanego w technologii grubowarstwowej o nazwie Rubalit 708S firmy CeramTec. Małe kawałki tego materiału napromieniono różnymi dawkami promieniowania beta, a następnie zmierzono sygnał optycznie stymulowanej luminescencji (OSL) metodą

CW-OSL ze stymulacją w zakresie światła zielonego 520-532 nm. Zmierzony sygnał był wyraźny i stabilny, co wstępnie potwierdza użyteczność tego materiału do zastosowania w dozymetrii retrospektywnej promieniowania jonizującego. Zmierzona odpowiedź dawkowa OSL jest liniowa przynajmniej w zakresie 0,6 Gy – 920 Gy. Dalsze badania mogą dać bardziej szczegółowe odpowiedzi na temat poziomu saturacji, charakterystyki i optymalizacji pomiaru OSL w najniższym zakresie dawek oraz doboru optymalnej długości światła stymulacji.

*Podziękowania. Praca naukowa finansowana częściowo przez Narodowe Centrum Nauki w ramach projektu badawczego 2018/31/B/ST10/03966.*

**Autorzy:** dr inż. Renata Majgier, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [r.majgier@ujd.edu.pl](mailto:r.majgier@ujd.edu.pl); dr hab. Ewa Mandowska, prof. UJD, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Zakład Zaawansowanych Metod Obliczeniowych, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [e.mandowska@ujd.edu.pl](mailto:e.mandowska@ujd.edu.pl); dr inż. Wojciech Grzesiak, Sieć Badawcza Łukasiewicz – Instytut Mikroelektroniki i Fotoniki, Oddział w Krakowie, Laboratorium Struktur Zakład Mikroelektroniki, Centrum Mikroelektroniki Hybrydowej i LTCC, 30-701 Kraków, ul. Zabłocie 39, E-mail: [wojciech.grzesiak@imif.lukasiewicz.gov.pl](mailto:wojciech.grzesiak@imif.lukasiewicz.gov.pl); prof. dr hab. Arkadiusz Mandowski, Uniwersytet Humanistyczno-Przyrodniczy im. Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: [a.mandowski@ujd.edu.pl](mailto:a.mandowski@ujd.edu.pl);

### LITERATURA

- [1] Hryniewicz A. (red.), Człowiek i promieniowanie jonizujące, PWN, Warszawa, 2001
- [2] Strupczewski A., Nie bójmy się energetyki jądrowej, SEP, Warszawa, 2010
- [3] Chen R., McKeever S.W.S., Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, World Scientific, Singapore, 1997
- [4] Bøtter-Jensen L., McKeever S.W.S., Wintle A.G., Optically Stimulated Luminescence Dosimetry, Elsevier, Amsterdam, 2003
- [5] Yukihiro E.G., McKeever S.W.S., Optically stimulated luminescence fundamentals and applications, Wiley, 2011.
- [6] Biernacka M., Mandowski A., Investigation of regeneration effect of blue luminescence in NaCl using variable delay optically stimulated luminescence (VD-OSL), *Radiation Measurements*, 56 (2013), 31-35
- [7] Mandowski A., Biernacka M., Anomalous regeneration of OSL in sodium chloride - experiment and modeling, *Radiation Measurements*, 71 (2014), 265-269
- [8] Singh A.K., Menon S.N., Kadam S.Y., Koul D.K., Datta D., OSL properties of three commonly available salt brands in India for its use in accident dosimetry, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, 419 (2018), 38-43
- [9] Mroziak A., Marczevska B., Bilski P., Gieszczyk W., Investigation of OSL signal of resistors from mobile phones for accidental dosimetry, *Radiation Measurements*, 71 (2014), 466-470
- [10] Kim H., Kim M.C., Lee J., Chang I., Lee S.K., Kim J.L., Thermoluminescence of AMOLED substrate glasses in recent mobile phones for retrospective dosimetry, *Radiation Measurements*, 122 (2019), 53-56
- [11] Bassinet C., Le Bris W., TL investigation of glasses from mobile phone screen protectors for radiation accident dosimetry, *Radiation Measurements*, 136 (2020), 106384
- [12] Majgier R., Chamerski K., Mandowski, A., On the Applicability of Camera Lens Protectors in Emergency Luminescence Dosimetry, *Materials*, 15(1) (2021), 193
- [13] Discher M., Kim H., Lee J., Thermally assisted IRSL and VSL measurements of display glass from mobile phones for retrospective dosimetry, *Nucl. Eng. Technol.*, 54 (2022), 429-436
- [14] Bassinet C., Tromprier F., Clairand I., Radiation accident dosimetry on glass by TL and EPR spectrometry, *Health Phys.*, 98 (2010), 400-405

- [15] Bassinet C., Woda C., Bortolin E., Della Monaca S., Fattibene P., Quattrini M.C., Bulanek B., Ekendahl D., Burbidge I., Cauwels V., et al. Retrospective radiation dosimetry using OSL of electronic components: Results of an inter-laboratory comparison, *Radiat. Meas.*, 71 (2014), 475–479
- [16] Pascu A., Vasiliniuc, S., Zeciu-Dolha M., Timar-Gabor A., The potential of luminescence signals from electronic components for accident dosimetry, *Radiat. Meas.*, 56 (2013), 384–388
- [17] Bailiff I.K., Sholom S., McKeever S.W.S., Retrospective and emergency dosimetry in response to radiological incidents and nuclear mass-casualty events: A review, *Radiat. Meas.* 94 (2016), 83–139
- [18] Mandowski A., Mandowska E., Kokot L., Bilski P. Olko P., Marczevska B., Portable system for identifying radiation hazards using OSL microdetectors, *Elektron. Konstr. Technol. Zastos.* 51 (2010), 136–138
- [19] Mandowska E., Smyka R., Mandowski A., Kieszkowski R., Majgier R., Czytnik OSL z nieliniową funkcją stymulacji optycznej, *Elektronika: konstrukcje, technologie, zastosowania*, 59(9) (2018), 12-15
- [20] Mandowska E., Smyka R., Mandowski A., Investigating the filling state of OSL detector traps with the optical sampling method, *Metrol. Meas. Syst.*, Vol. 29 (2022), No. 2; doi: 10.24425/mms.2022.140039
- [21] Land P.L., Equations for thermoluminescence and thermally stimulated current as derived from simple models, *J. Phys. Chem. Solids*, 30 (1969), 1693-1708
- [22] Mandowski A., Semi-localized transitions model for thermoluminescence, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 38 (2005), 17-21