

Analiza widmowa radiacyjnie indukowanej luminescencji ceramicznego podłoża grubowarstwowego

Streszczenie. Wiele popularnych urządzeń elektronicznych wykonanych jest z zastosowaniem podłoża grubowarstwowego. Element ten jest wykonany zazwyczaj z tlenku glinu (Al_2O_3) z różnymi domieszkami. Materiał ten wykazuje optycznie stymulowaną luminescencję (OSL) po ekspozycji na promieniowanie jonizujące. Daje to możliwość wykorzystania takich elementów w dozymetrii retrospektywnej i awaryjnej. Pomiar spektralnie rozdzielczej termoluminescencji (SR-TL) pokazały, że emisja zachodzi głównie w obszarze czerwonym i bliskiej podczerwieni.

Abstract. Many popular electronic devices are made using a thick film substrate. This element is usually made of aluminum oxide (Al_2O_3) with various dopants. This material exhibits optically stimulated luminescence (OSL) when exposed to ionizing radiation. This makes it possible to use such elements in retrospective and emergency dosimetry. Spectrally resolved thermoluminescence (SR-TL) measurements showed that the emission mainly occurs in the red and near-infrared regions. (Spectral analysis of radiation-induced luminescence of a ceramic thick-film substrate.)

Słowa kluczowe: technologia grubowarstwowa, dozymetria, optycznie stymulowana luminescencja (OSL), spektralnie rozdzielcza termoluminescencja (SR-TL).

Keywords: thick film technology, dosimetry, optically stimulated luminescence (OSL), spectrally resolved thermoluminescence (SR-TL) .

Wstęp

Narażenie na promieniowanie jonizujące we współczesnym świecie związane jest przede wszystkim z diagnostyką medyczną. Obrazowanie rentgenowskie, tomografia, badania PET, znaczniki radioizotopowe i inne metody są powszechnie stosowane na szeroką skalę. Źródła promieniotwórcze są też wykorzystywane w przemyśle (np. defektoskopia, konserwacja żywności), systemach bezpieczeństwa (np. na lotniskach) i badaniach materiałowych. Niewielki przyrządek związany jest z energetyką jądrową [1,2]. Nie można też wykluczyć możliwości użycia broni jądrowej i rozmaitych wypadków czy awarii związanych z przenoszeniem i wykorzystywaniem źródeł promieniotwórczych.

Dochodzi wtedy do sytuacji nadzwyczajnej. Na skutek zaskoczenia, ludność cywilna nie jest przygotowana, ani wyposażona w profesjonalne liczniki promieniowania jonizującego. W celu wyznaczenia pochłoniętej dawki promieniowania jonizującego musimy się uciec do metod tzw. *dozymetrii retrospektywnej lub awaryjnej*.

Metody te polegają na wykorzystaniu radioluminoforów naturalnie występujących w przyrodzie (np. kwarc, sól kamienna, skalenie) [3-5] jak również tych, które zostały wytworzone przez człowieka i są częścią składową przedmiotów codziennego użytku - np. niektóre części elektroniczne wykorzystywane w telefonach komórkowych [6-10], lekarstwa [11] i inne [12-15].

Najczęściej stosuje się do tych pomiarów zjawisko termoluminescencji (TL) lub optycznie stymulowanej luminescencji (OSL) [16-18]. Metody te charakteryzują się wysoką czułością i są powszechnie stosowane w rutynowej dozymetrii promieniowania jonizującego.

W pracy przedstawiono wyniki badań spektralnie rozdzielczej termoluminescencji (*spectrally resolved thermoluminescence*, SR-TL) popularnego podłoża ceramicznego stosowanego w elektronice. Niedawno wykazano [19], że materiał ten wykazuje bardzo dobre własności radioluminescencyjne przy pomiarach OSL w typowej konfiguracji czynnika, ze stymulacją optyczną w zakresie zielonym (520-532 nm) i detekcją luminescencji w zakresie UV (300 – 380 nm). Za oba zjawiska (TL i OSL) odpowiedzialne są najczęściej te same poziomy pułapkowe i centra rekombinacji [16]. Z tego powodu pomiary SR-TL

pozwalają na odpowiedni dobór okien optycznych w zakresie stymulacji i detekcji. Optymalna konfiguracja czynnika OSL pozwala na polepszenie prognozy czułości i poszerzenie zakresu w którym jest możliwa rejestracja zaabsorbowanej dawki.

Materiały i metody

Przedmiotem badań było komercyjnie dostępne podłożo grubowarstwowe Rubalit 708S firmy CeramTec. Podłożo to jest używane w wielu urządzeniach elektronicznych. Jest to materiał polikrystaliczny zawierający 96% Al_2O_3 . Pozostała część to domieszki - głównie MgO, SiO_2 i CaO oraz śladowe ilości innych pierwiastków.

Próbki były napromieniane różnymi dawkami promieniowania beta $^{90}Sr/^{90}Y$ ze źródła o aktywności 2,9 GBq. Proces napromieniania przeprowadzany był w ciemności. Po napromienieniu materiał może być przechowywany nawet przez wiele godzin, a nawet tygodni. Należy go jednak chronić przed dostępem światła. Uwolnienie zaabsorbowanej energii w postaci luminescencji jest możliwe w wyniku odpowiedniej stymulacji materiału.

W metodzie optycznie stymulowanej luminescencji (OSL) poddajemy próbkę stymulacji optycznej, oświetlając 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. Najczęściej używa się stymulacji ciągłej (*continuous wave optically stimulated luminescence*, CW-OSL). Ze względu na niski poziom emisji układ pomiarowy powinien być bardzo czuły. Dlatego zwykle stosuje się niskoszumowe fotopowielacze pracujące w trybie zliczania fotonów [17,18].

Odczyty OSL wykonano przy użyciu czynnika OSL „HELIOS-3” [20,21] (Zero-Rad, Polska). Czynnikiem 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 niemal całkowicie blokują transmisję światła poniżej 500 nm. Detekcja luminescencji dokonywana była w zakresie UV (300 – 380 nm, filtry

Schott UG11) za pomocą zintegrowanego modułu zliczania fotonów H7360 (Hamamatsu) z oknem kwarcowym oraz układu elektronicznego zliczającego impulsy i interfejsu komputera. Dodatkowy fotosensor stosowany jest w celu kontroli emisji diod LED.

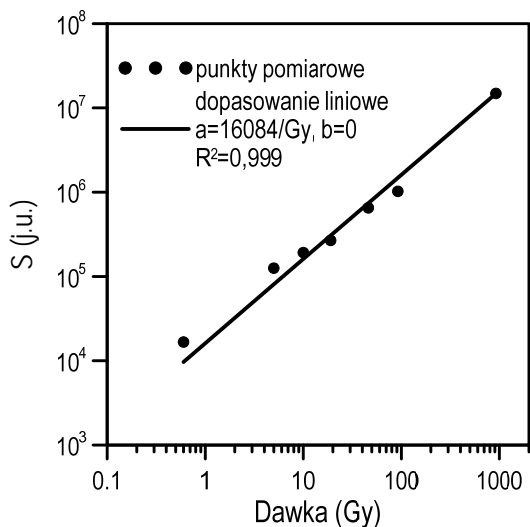
W metodzie termoluminescencji (TL) stymulacja dokonywana jest przez podgrzanie materiału [16]. Sterowany elektronicznie grzejnik realizuje liniowy wzrost temperatury od temperatury pokojowej do kilkuset stopni Celsjusza. Tak jak w metodzie OSL luminescencja rejestrowana jest za pomocą niskoszumowego fotopowielacza pracującego w trybie zliczania fotonów. W pomiarze TL stosuje się czasem filtry optyczne ograniczające wpływ promieniowania ciała doskonale czarnego w wysokich temperaturach.

Pomiar spektralnie rozdzielczej termoluminescencji (SR-TL) jest znacznie trudniejszy i wymaga bardziej złożonej aparatury pomiarowej z uwagi na niską intensywność luminescencji [22]. Pomiar SR-TL przeprowadzono w komorze próżniowej (Janis) z opcją chłodzenia do temperatury ciekłego azotu i grzania do temperatury 650 K. Komora jest wyposażona w cztery okna kwarcowe. Temperatura próbki narastała liniowo z szybkością 0.7 K/s od temperatury pokojowej do ponad 600 K. Dzięki stosunkowo wolnej szybkości grzania unika się znacznego gradientu temperatury w badanej próbce.

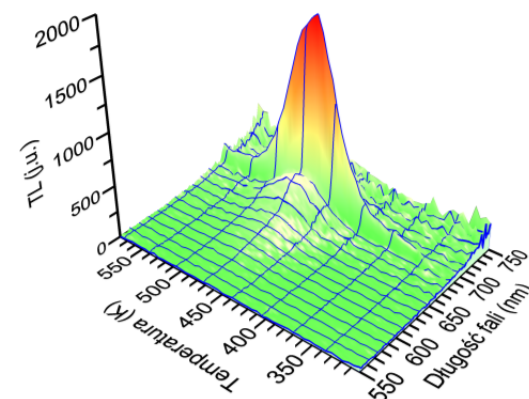
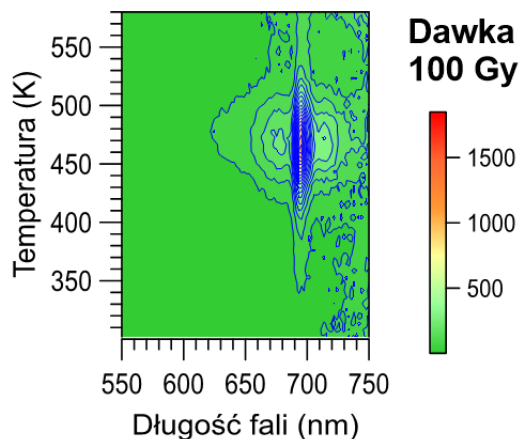
Luminescencja była rejestrowana z wykorzystaniem spektrografu SP150 firmy Acton Research połączonego z kamerą PIXIS 256E firmy Princeton Instruments chłodzoną termoelektrycznie, której chip ma format 1024x256 pixeli i pracuje w zakresie spektralnym 190–1080 nm. Wykorzystano przy tym opcję sprzętowego łączenia pikseli w kolumny, co znacząco poprawia stosunek sygnału do szumu. W torze detekcyjnym zastosowano filtr KG-5 (Schott) w celu zmniejszenia termicznego promieniowania podczerwonego pojawiającego się podczas ogrzewania próbki. Uzyskane widma były numerycznie kalibrowane z uwzględnieniem charakterystyki spektralnej układu pomiarowego.

Wyniki i dyskusja

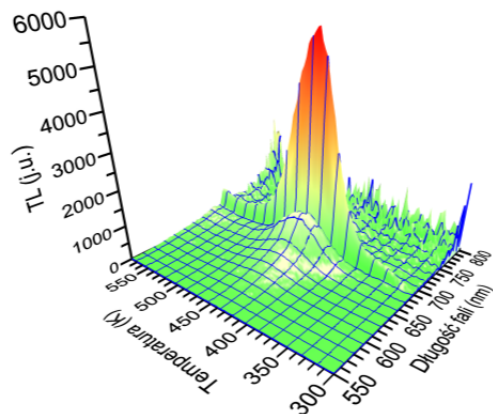
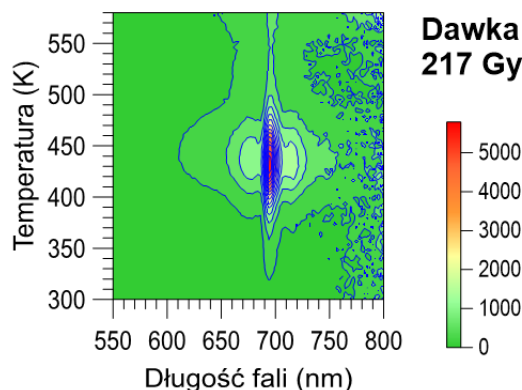
Częściową charakterystykę dawkową podłoża Rubalit 708S, wyznaczoną metodą OSL na czytniku Helios-3 ze standardowym układem filtrów, przedstawiono na rysunku 1. Pomiar wykonano w trybie CW-OSL całkując liczbę zliczeń w przedziale 0-60 s.



Rys.1. 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) skalkowanego w przedziale 0-60 s pomniejszonego o tło.



Rys.2. Spektralnie rozdzielcza termoluminescencja podłoża ceramicznego Rubalit 708S po napromienieniu dawką 100 Gy.



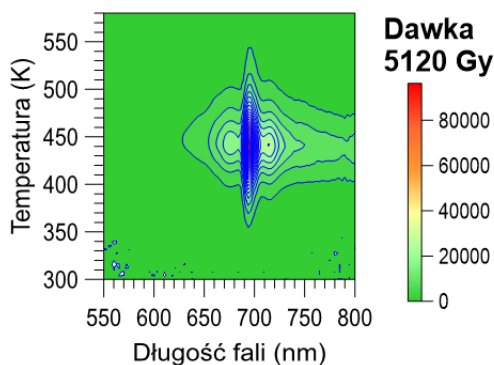
Rys.3. Spektralnie rozdzielcza termoluminescencja podłoża ceramicznego Rubalit 708S po napromienieniu dawką 217 Gy.

Jak widać, charakterystyka ta pokazuje tylko część możliwej odpowiedzi na promieniowanie jonizujące tego materiału. W zakresie dawek od 0,6 Gy do 920 Gy charakterystyka z dobrym przybliżeniem jest liniowa [19]. Poziom nasycenia pojawia się na pewno powyżej 1 kGy, jednak badania OSL dla tak dużych dawek nie zostały dotychczas wykonane.

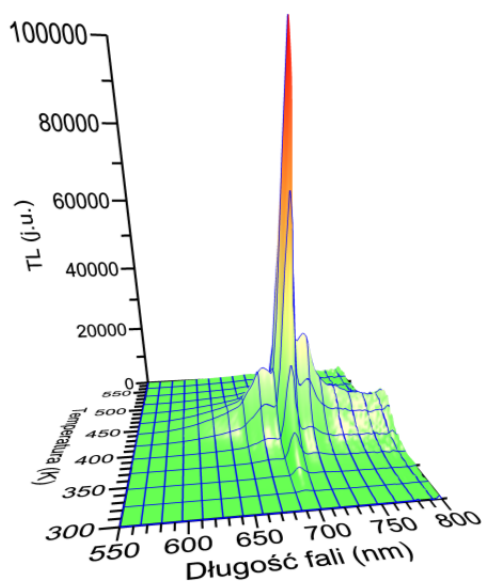
Pomiary SR-TL wykonano dla trzech dawek: 100 Gy, 217 Gy i 5120 Gy. Powierzchnie przedstawiające intensywność luminescencji w zależności od temperatury i długości fali emitowanego światła przedstawione są odpowiednio na rysunkach 2, 3 i 4.

W omawianych przypadkach intensywność emisji światła była proporcjonalna do zaabsorbowanej dawki. Poza tym, wykresy wyglądają podobnie. Główna emisja luminescencji przypada na zakres temperatur ok. 400-500 K. Zakres spektralny jest bardzo wąski. Emitowane jest przede wszystkim światło czerwone z zakresu ok. 650-730 nm z ostrym pikiem ok. 700 nm. Emisja w krótszym zakresie fal - poniżej 550 nm była niemożliwa do zaobserwowania. Ten wynik pomiaru jest dość zaskakujący, ponieważ w czytniku OSL mierzono luminescencję jedynie w ultrafiolecie, w zakresie długości fal 300 – 380 nm.

Przyczyna tej rozbieżności nie jest znana. Metoda SR-TL jest jednak co najmniej trzy rzędy wielkości mniej czuła niż pomiary OSL dokonywane za pomocą fotopowielacza. Być może jakaś słaba emisja w ultrafiolecie też występuje, jednak w pomiarach SR-TL trudno jest tą komponentę wyodrębnić z tła. Inne wytłumaczenie jest takie, że pułapki stymulowane światłem mogą być znacznie głębsze i nie są aktywne w mierzonym metodą SR-TL zakresie temperatur.

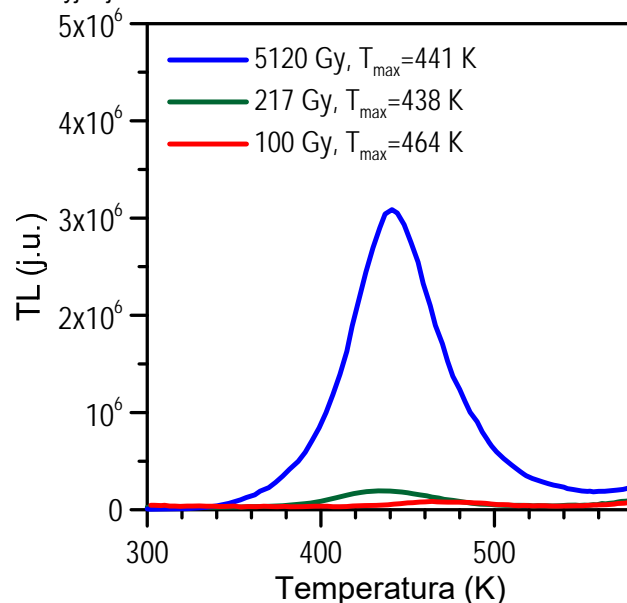


Rys.4. Spektralnie rozdzielcza termoluminescencja podłoża ceramicznego Rubalit 708S po napromienieniu dawką 5120 Gy.

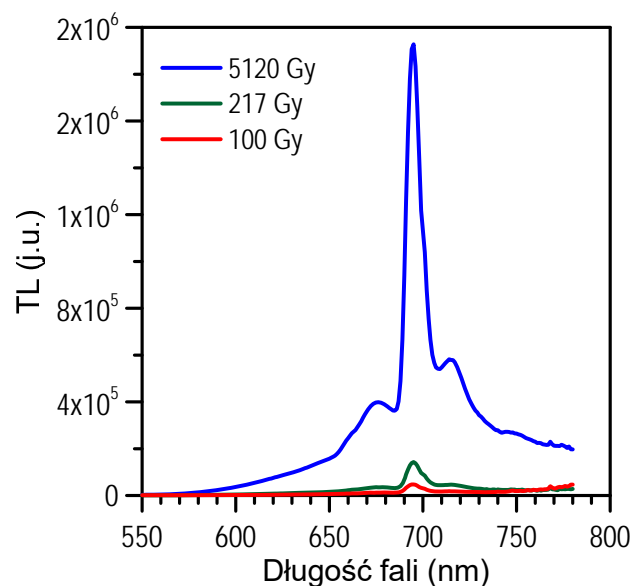


Wykres SR-TL można scałkować po długości fali otrzymując klasyczną krzywą jarzenia TL. Krzywe takie, dla danych prezentowanych na Rys. 2, 3 i 4 pokazano na Rys. 5. Pokazane krzywe są jednopikowe, co może wskazywać na jeden typ dominujących aktywnych pułapek nośników ładunku.

Krzywe widmowe, uzyskane przez scałkowanie danych SR-TL po temperaturze są znacznie bardziej skomplikowane. Na Rys. 6 pokazano takie rozkłady spektralne dla trzech różnych dawek. Wszystkie rozkłady składają się co najmniej z czterech pików. Trzy wąskie piki nałożone są na jeden szeroki. Centralny, bardzo ostry i intensywny pik ma maksimum położone w okolicy 700 nm. Mamy więc do czynienia z przypadkiem bardzo złożonej rekombinacji promienistej zachodzącej na wielu centrach. Bardzo intensywna emisja w zakresie czerwonym ok. 700 nm rokuje pozytywnie w kontekście wykorzystania podłoża ceramicznego Rubalit 708S w dozymetrii retrospektywnej i awaryjnej.



Rys.5. Krzywe jarzenia TL uzyskane przez scałkowanie danych SR-TL po długościach fali.



Rys.6. Rozkłady spektralne emisji TL uzyskane przez scałkowanie danych SR-TL po temperaturze.

Podsumowanie

Ceramiczne podłoża grubowarstwowe stosowane są na szeroką skalę w elektronice przemysłowej i wielu urządzeniach powszechnego użytku. Duża popularność tego materiału daje możliwość realnego zastosowania w dozymetrii retrospektywnej i awaryjnej. Może to mieć miejsce w sytuacji nieprzewidzianego zdarzenia radiacyjnego spowodowanego np. atakiem nuklearnym lub poważną awarią elektrowni jądrowej. W takiej sytuacji często nie mamy do dyspozycji profesjonalnych urządzeń dozymetrycznych i musimy korzystać z metod zastępczych w celu oszacowania pochłoniętej dawki promieniowania jonizującego.

Wstępne wyniki badań pokazały, że podłoże ceramiczne Rubalit 708S firmy CeramTec bardzo dobrze nadaje się do tego celu [19], oferując wysoką czułość i duży zakres liniowej odpowiedzi dawkowej.

W pracy zaprezentowano wyniki badań spektralnie rozdzielczej termoluminescencji tego podłoża. Badania wykazały silną luminescencję w zakresie czerwonym i bliskiej podczerwieni, ok. 650-730 nm. Luminescencji tej nie obserwowano dotychczas w pomiarach OSL. W związku z tym, można przypuszczać, że odpowiednia optymalizacja toru stymulacji i detekcji w metodzie OSL pozwoli znacznie poprawić parametry dozymetryczne badanego materiału.

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

Autorzy: dr hab. Ewa Mandowska, prof. UJD, Uniwersytet Jana Długosza, Katedra Zaawansowanych Metod Obliczeniowych, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: e.mandowska@ujd.edu.pl; dr inż. Renata Majgier, Uniwersytet Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: r.majgier@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; prof. dr hab. Arkadiusz Mandowski, Uniwersytet Jana Długosza, Katedra Fizyki Doświadczalnej i Stosowanej, ul. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Częstochowa, E-mail: 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] 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
- [4] Mandowski A., Biernacka M., Anomalous regeneration of OSL in sodium chloride - experiment and modeling, *Radiation Measurements*, 71 (2014), 265-269
- [5] 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
- [6] Mroziak A., Marczevska B., Biłski P., Gieszczyk W., Investigation of OSL signal of resistors from mobile phones for accidental dosimetry, *Radiation Measurements*, 71 (2014), 466-470
- [7] 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
- [8] Bassinet C., Le Bris W., TL investigation of glasses from mobile phone screen protectors for radiation accident dosimetry, *Radiation Measurements*, 136 (2020), 106384
- [9] Majgier R., Chamerski K., Mandowski A., On the Applicability of Camera Lens Protectors in Emergency Luminescence Dosimetry, *Materials*, 15(1) (2021), 193
- [10] 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
- [11] Szufa K.M., Majgier R., Optically stimulated luminescence properties of commercially available KCL dietary supplements as retrospective dosimeters, *Luminescence*, 37 (2022), 1760-1768
- [12] Bassinet C., Trompier F., Clairand I., Radiation accident dosimetry on glass by TL and EPR spectrometry, *Health Phys.*, 98 (2010), 400-405
- [13] 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
- [14] 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
- [15] 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
- [16] Chen R., McKeever S.W.S., Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, *World Scientific, Singapore*, 1997
- [17] Bøtter-Jensen L., McKeever S.W.S., Wintle A.G., *Optically Stimulated Luminescence Dosimetry*, Elsevier, Amsterdam, 2003
- [18] Yukihiro E.G., McKeever S.W.S., *Optically stimulated luminescence fundamentals and applications*, Wiley, 2011.
- [19] Majgier R., Mandowska E., Grzesiak W., Mandowski A., Ceramiczne podłoża grubowarstwowe jako materiał dla dozymetrii retrospektywnej, *Przegląd Elektrotechniczny*, R.98 nr 10/2022 (2022), 284-287
- [20] Mandowski A., Mandowska E., Kokot L., Biłski P., Olko P., Marczevska B., Portable system for identifying radiation hazards using OSL microdetectors, *Elektron. Konstr. Technol. Zastos.* 51 (2010), 136-138
- [21] 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
- [22] Mandowska E., Mandowski A., Numerical analysis of a new spectrally resolved thermoluminescence measurement method, *Measurement*, 136 (2019), 603-607