



dr hab. inż. Barbara Marczevska  
Instytut Fizyki Jądrowej  
Polskiej Akademii Nauk  
ul. Radzikowskiego 153  
31-342 Kraków



Kraków, 28.05.2020r.

DF 063/14/2020

Recenzja rozprawy doktorskiej  
Pani mgr. Sandry Witkiewicz-Łukaszek  
pt. Kompozytowe scyntylatory na bazie warstw i kryształów granatów:  
kryształizacja metodą epitaksji z fazy ciekłej oraz badania ich właściwości  
luminescencyjnych i scyntylacyjnych

Praca doktorska Pani mgr Sandry Witkiewicz-Łukaszek powstała w Katedrze Materiałów Optoelektronicznych Instytutu Fizyki Uniwersytetu Kazimierza Wielkiego w Bydgoszczy w ramach Studium Doktoranckiego Fizyka Techniczna prowadzonego na Wydziale Inżynierii Materiałowej i Fizyki Technicznej Politechniki Poznańskiej.

Niniejsza praca doktorska to cykl 10 artykułów naukowych poświęconych kompozytowemu materiałom luminescencyjnym na bazie cienkich warstw monokrystalicznych i monokryształów granatów, otrzymanych metodą epitaksji z fazy ciekłej, pod kątem ich zastosowania jako detektory scyntylacyjne do monitorowania składu promieniowania mieszanych wiązek jonizacyjnych oraz jako ekrany scyntylacyjne w mikroobrazowaniu.

Tematycznie praca doktorska składa się z 4 części, którym przyporządkowane są następujące artykuły naukowe:

**Część I.** Opracowanie scyntylatorów w postaci warstw monokrystalicznych granatów  $Tb_{3-x}GdxAl_{5-y}Ga_yO_{12}$  metodą LPE

C1.1 Y. Zorenko, P. Douissard, T. Martin, F. Riva, V. Gorbenko, T. Zorenko, K. Paprocki, A. Iskalieva, S. Witkiewicz, A. Fedorov, P. Bilski, A. Twardak. Scintillating screens based on the LPE grown  $Tb_3Al_5O_{12}:Ce$  single crystalline films. *Optical Materials* 65 (2017) 73-81

C1.2. V. Gorbenko, T. Zorenko, S., Witkiewicz, K. Paprocki, O. Sidletskiy, A. Fedorov, P. Bilski, A. Twardak, Y. Zorenko. LPE growth of single crystalline film scintillators based on  $Ce^{3+}$  doped  $Tb_{3-x}GdxAl_{5-y}Ga_yO_{12}$  mixed garnets. *Crystals* 7 (2017) 262.

**Część II.** Kompozytowe scyntylatory oparte na strukturach epitaksjalnych granatu LuAG z domieszkami jonów Ce, Pr i Sc

C2.1 S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, K. Paprocki, O. Sidletskiy, I. Gerasymov, J.A. Mares, R. Kucerkova, M. Nikl, Yu. Zorenko. Novel all-solid-state composite scintillators based on the epitaxial structures of LuAG garnet doped with Pr, Sc and Ce ions. *IEEE Transactions on Nuclear Science* 65 (2018) 2114 – 2119





C2.2 S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, K. Paprocki, O. Sidletski, I. Gerasymov, J.A. Mares, R. Kucerkova, M. Nikl, Yu. Zorenko. Composite scintillators based on the crystals and single crystalline films of LuAG garnet doped with  $Ce^{3+}$ ,  $Pr^{3+}$  and  $Sc^{3+}$  ions. *Optical Materials* 84 (2018) 593-599

C2.3 J.A. Mares, S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, R. Kucerkova, A. Beitlerova, C. D'Ambrosio, J. Dlouhy, M. Nikl, Yu. Zorenko. Alpha and gamma spectroscopy of composite scintillators based on the LuAG:Pr crystals and single crystalline films of LuAG:Ce and (Lu,Gd,Tb)AG:Ce garnets. *Optical Materials* 96 (2019) 109268

C2.4 S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, O. Sidletskiy, P. Arhipov, A. Fedorov, J.A. Mares, R. Kucerkova, M. Nikl, Yu. Zorenko, High-performance composite scintillators based on the single crystalline films and crystals of LuAG garnet, *CrystEngComm*, 2020, w trakcie publikacji.

**Część III.** Kompozytowe scyntylatory oparte na warstwach i kryształach mieszanych granatów z domieszką jonów ceru

C3.1 S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, K. Paprocki, O. Sidletskiy, A. Fedorov, R. Kucerkova, J. A. Mares, M. Nikl, Yu. Zorenko. Epitaxial growth of composite scintillators based on  $Tb_3Al_5O_{12}:Ce$  single crystalline films and  $Gd_3Al_{2.5}Ga_{2.5}O_{12}:Ce$  crystal substrates. *CrystEngComm* 20 (2018) 3994-4002

C3.2 S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, O. Sidletskiy, I. Gerasymov, A. Fedorov, A. Yoshikawa, J. A. Mares, M. Nikl, Yu. Zorenko. Development of Composite Scintillators Based on Single Crystalline Films and Crystals of  $Ce^{3+}$ -Doped  $(Lu,Gd)_3(Al,Ga)_5O_{12}$  Mixed Garnet Compounds. *Cryst. Growth Des.* 18 (2018) 1834–1842

**Część IV.** Opracowanie prototypów kompozytowych materiałów termoluminescencyjnych na bazie struktur epitaksjalnych granatów

C4.1 S. Witkiewicz-Lukaszek, V. Gorbenko, T. Zorenko, Y. Zorenko, W. Gieszczyk, A. Mrozik, P. Bilski. Composite thermoluminescent detectors based on the  $Ce^{3+}$  doped LuAG/YAG and YAG/LuAG epitaxial structures. *Radiation Measurements* 128 (2019) 106124

C4.2 S. Witkiewicz-Lukaszek, A. Mrozik, V. Gorbenko, T. Zorenko, P. Bilski, Yu. Zorenko, LPE growth of composite thermoluminescent detectors based on the  $Lu_{3-x}Gd_xAl_5O_{12}:Ce$  single crystalline films and YAG:Ce crystals, *Crystals*, 2020, 10(3), 189.

Wskazane prace zostały opublikowane w wysoko cenionych czasopismach specjalistycznych, takich jak *Optical Materials* (IF=2,68), *Crystals* (IF=2,08), *CrystEngComm* (IF=3,38). Udział Pani mgr Sandry Witkiewicz-Lukaszek w procesie powstawania i publikowania prac został szczegółowo opisany przez Doktorantkę. Do prac zostały dołączone Oświadczenia współautorów o ich wkładzie w przygotowanie publikacji ocenianym przez nich znacznie poniżej 25%. Wszyscy współautorzy podkreślają dominujący wkład Doktorantki w powstanie publikacji.

Doktorantka przygotowała również **Przewodnik**. Przewodnik zawiera 44 strony i składa się z 5 rozdziałów, poprzedzonych streszczeniami w języku polskim, angielskim i rosyjskim. We *Wstępie* Doktorantka przedstawiła rys historyczny dotyczący technologii epitaksji z fazy ciekłej (LPE), która w ciągu ostatnich 30 lat otworzyła nowe możliwości opracowywania innowacyjnych materiałów luminescencyjnych opartych na warstwach monokrystalicznych różnych związków tlenkowych, w szczególności granatów. Technologia epitaksji z fazy ciekłej przyczyniła się do rozwoju szeregu dziedzin inżynierii materiałowej, optoelektroniki, fizyki jądrowej, a także biologii, medycyny i





archeologii. Jak napisała Doktorantka, nowopowstałe materiały luminescencyjne w postaci warstw monokrystalicznych znalazły zastosowanie jako podstawowe elementy funkcjonalne w laserach mikro-chipowych, ekranach katodoluminescencyjnych, detektorach scyntylacyjnych do rejestracji cząstek  $\alpha$  i  $\beta$  oraz w detektorach mikrotomograficznych wykorzystujących źródła promieniowania rentgenowskiego lub promieniowania synchrotronowego.

Metoda epitaksji z fazy ciekłej daje również możliwość tworzenia zaawansowanych typów scyntylatorów kompozytowych typu „phoswich” („kanapka fosforów”) do rejestracji składowych promieniowania jonizującego, wykorzystywanych do analizy zawartości mieszanych strumieni cząstek i fotonów o różnych zasięgach w materiałach scyntylacyjnych. Takie kompozytowe scyntylatory lub materiały termoluminescencyjne (TL) stanowią epitaksjalne układy monokrystaliczne przeznaczone do jednoczesnej rejestracji cząstek  $\alpha$  i  $\beta$  o niskiej penetracji (krótkim zasięgu) w wytworzonej warstwie oraz promieniowania o wysokiej penetracji takiego jak kwanty  $\gamma$  lub promieniowanie X docierającego do podłoża.

Rozdział *Wstęp* został zakończony podaniem celu pracy doktorskiej. Według Doktorantki celem pracy doktorskiej była krystalizacja metodą LPE oraz badanie właściwości luminescencyjnych i scyntylacyjnych kompozytowych materiałów opartych na strukturach epitaksjalnych typu „warstwa-kryształ” na bazie prostych i mieszanych granatów, a osiągnięcie tego celu wymagało rozwiązania 6 zadań naukowych, które Doktorantka wymieniła jako:

1. Krystalizacja hetero-epitaksjalna wysokowydajnych scyntylatorów w postaci warstw monokrystalicznych mieszanych granatów  $(\text{Tb,Gd})_3(\text{Al,Ga})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  metodą LPE w warunkach znacznej różnicy parametrów sieci SCF i podłoż GAGG.
2. Szczegółowe badanie absorpcji, luminescencji oraz właściwości scyntylacyjnych i termoluminescencyjnych warstw mieszanych granatów w celu optymalizacji ich właściwości oraz ustalenia możliwości skutecznych modyfikacji składu warstw przy opracowaniu kompozytowych scyntylatorów i materiałów termoluminescencyjnych.
3. Opracowanie z użyciem metody LPE kompozytowych scyntylatorów na bazie warstw i kryształów-podłoż LuAG z domieszkami jonów Ce, Pr i Sc.
4. Opracowanie metodą LPE kompozytowych scyntylatorów na bazie warstw TbAG i LGAGG oraz kryształów-podłoż GAGG, domieszkowanych jonami  $\text{Ce}^{3+}$ .
5. Pilotażowe badania nad opracowaniem prototypów kompozytowych materiałów termoluminescencyjnych na bazie struktur epitaksjalnych granatów.
6. Badania nad optymalizacją składu warstw oraz typów domieszek w celu uzyskania jak najlepszej separacji sygnałów pochodzących od warstw i podłoż kompozytowych materiałów scyntylacyjnych i termoluminescencyjnych.

Przewodnik w rozdziale *Forma pracy doktorskiej oraz wkład doktoranta* zawiera spis publikacji wraz z określeniem wkładu własnego Doktorantki.

Kolejny rozdział to *Metody eksperymentalne*, w którym znalazł się opis *Krystalizacji warstw i kompozytowych scyntylatorów metodą LPE*, podrozdział *Materiały do produkcji kompozytowych scyntylatorów*, przedstawienie *Metod badań właściwości optycznych kompozytowych scyntylatorów i termoluminoforów* oraz podrozdział *Wybrane parametry optyczne oraz metody analizy*. Kolejne rozdziały Przewodnika to *Krótki opis badań składających się na rozprawę doktorską* oraz *Podsumowanie rozprawy doktorskiej*, zakończone spisem literatury liczącym 30 pozycji.

Przewodnik jest logicznie uporządkowanym kluczem do zrozumienia zagadnień prezentowanych w publikacjach. Jego forma oraz układ rozdziałów jest logiczny i uporządkowany.





Publikacje, wskazane jako główna praca doktorska ze względu na swoją formę, przeszły już recenzję wydawniczą każda z osobna. Obowiązkiem recenzenta jest jednak również wskazanie pewnych braków podczas całościowej oceny pracy, czyli ciągu 10 publikacji. Uchybienia te, w moim przekonaniu, nie umniejszają wartości merytorycznej cyklu publikacji, ale wyjaśnienie tych kwestii wzbogaciłoby przedstawione prace:

1. Przytoczone wyniki badań podają tylko krzywe jarzenia TL dla jednej dawki wynoszącej 50 Gy w przypadku napromieniania cząstkami alfa oraz dawki 0.97 Gy w przypadku cząstek beta (podane na rys. 6 w pracy C4.2). Jaka jest zależność dawkowa, czyli jaki jest sygnał termoluminescencyjny badanego materiału dla innych dawek? Przy jakich dawkach minimalnych widoczna jest jeszcze separacja pików pochodzących od promieniowania alfa i beta?

2. Kiedy przeprowadzany był pomiar TL, po jakim czasie od napromienienia i jak sygnał TL zmienia się w czasie? Jest to pytanie o bardzo istotną cechę materiałów opto-luminescencyjnych, jaką jest zanik sygnału w czasie po napromienieniu.

Jeśli chodzi o Przewodnik to mam następujące uwagi:

1. Według mnie cel pracy doktorskiej został niespójnie sformułowany. W rozdziale *Wstęp* czytamy: *celem pracy doktorskiej była krystalizacja metodą LPE oraz badanie właściwości luminescencyjnych i scyntylacyjnych kompozytowych materiałów opartych na strukturach epitaksjalnych typu „warstwa-kryształ” na bazie prostych i mieszanych granatów*, w Podsumowaniu jest mowa o „podejściach”. W Podsumowaniu czytamy: *Celem pracy doktorskiej była weryfikacja możliwości realizacji trzech różnych podejść do konstruowania kompozytowych scyntylatorów i materiałów TL do jednoczesnej detekcji cząstek i kwantów w mieszanych wiązkach jonizujących, z wykorzystaniem metody LPE. Pierwsze podejście polega na zmianie domieszek w warstwach i podłożu tej samej matrycy w postaci granatu LuAG, co powoduje ich różne właściwości scyntylacyjne (część II). Drugie podejście oparte jest na wykorzystaniu różnych typów warstw i kryształów mieszanych granatów, domieszkowanych jonami  $Ce^{3+}$  z bardzo odmiennymi właściwościami scyntylacyjnymi. Trzecie podejście polega na wykorzystaniu różnych właściwości termoluminescencyjnych warstw i kryształów prostych i mieszanych granatów, domieszkowanych jonami  $Ce^{3+}$* . Wydaje się, że użycie słowa „podejście” jest w tym przypadku niefortunne, ponieważ jest używane zamiennie jako: zmiana domieszkowania, użycie różnych warstw lub wykorzystanie różnych właściwości materiału. Celem pracy może być osiągnięcie konkretnego efektu, typu opracowanie nowego materiału lub znaczne zwiększenie wydajności materiału, a nie weryfikacja możliwości realizacji trzech podejść, czyli dróg do osiągnięcia celu.

2. W Przewodniku nie zostały podane informacje na temat samych badanych próbek, ich wielkości, a zwłaszcza grubości warstw, które są kluczowe przy określaniu zasięgu cząstek. Informacje te znajdują się w publikacjach, ale przytoczenie tych danych w Przewodniku ułatwiłoby czytelnikowi zrozumienie problemu.

3. Przewodnik wymagałby starannej poprawy pod względem logicznego i jasnego sprecyzowania pojęć, jak i uważnej korekty językowej i edytorskiej. Przewodnik zawiera niejasne opisy, typu:

- „Stosunek  $R_1=11-12$  określa kinetyczną charakterystykę roztworu i rozpuszczalność tlenków tworzących warstwę.  $R_2 = 0.02-0.035$  określa typ fazy granatu, jako głównej fazy przy krystalizacji warstw. Natomiast wybór stosunków molowych  $R_3$  i  $R_4$  odpowiednio w zakresach  $0,02-0,035$  i  $0,01-0,15$  wiąże się z optymalizacją wydajności scyntylacyjnej warstw” (podrozdział 3.1). A o czym świadczyłby stosunek  $R_1$  wynoszący 10 lub 13?

- „Inżynieria składu kationów pozwala na otrzymanie warstw z domieszką  $Tb^{3+}$  lub  $Gd^{3+}$  z znacznie większymi promieniami jonów w porównaniu z promieniami kationów  $Lu^{3+}$  (podrozdział 3.2). „Inżynieria składu kationów pozwala” to niefortunne określenie.





INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ  
im. Henryka Niewodniczańskiego  
POLSKIEJ AKADEMII NAUK

- „Głębokość penetracji cząstek  $\beta$  (źródła  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ) o typowej energii odpowiednio 546 keV i 2280 keV wynosi odpowiednio 0.8 i 1.3 mm, (dla średniej energii 1.1 MeV)” (podrozdział 3.4.6). Do czego odnosi się średnia energia 1.1 MeV?

- Podpis pod rysunkiem Rys. 8 (a) – „znormalizowane widma KL warstw  $\text{Tb}_3\text{Al}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}\text{Ce}$  (PbO) przy stężeniu Ga w zakresie  $y=0.2-5$  (a) oraz warstw  $\text{Tb}_{5-x}\text{Gd}_x\text{Al}_{2.5}\text{Ga}_{2.5}\text{O}_{12}:\text{Ce}$  (PbO) przy stężeniu Gd w zakresie 0,5-1.5 (b)”.

4. Przewodnik zawiera zbyt dosłowne tłumaczenie tekstu z języka angielskiego typu „ $\alpha$ -cząstkami od źródła  $^{241}\text{Am}$ ” (na przykład podpis pod rys. 24, ale również występuje w wielu innych miejscach), rysunki z opisem polsko-angielskim (rys. 5, 10, 24).

5. Niektóre pomiary były wykonane w Instytucie Fizyki Jądrowej, którego pełna nazwa brzmi: Instytut Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk.

6. Przewodnik ma bardzo zbitą formę, zastosowanie odstępów między podpisami pod rysunkami, a tekstem ułatwiłoby czytelnikowi śledzenie tekstu.

Wymienione przeze mnie powyżej usterki odnoszą się do Przewodnika, który jest tylko materiałem pomocniczym i dlatego nie wpływają na ogólną ocenę cyklu publikacji, stanowiących rozprawę doktorską Pani mgr Sandry Witkiewicz – Łukaszyk.

Oceniając dorobek naukowy Doktorantki należy podkreślić dużą liczbę publikacji, których Doktorantka jest pierwszym autorem lub współautorem. Na dorobek naukowy składa się 13 publikacji, w tym 10 wskazanych jako cykl publikacji tworzących pracę doktorską, przy czym jest pierwszym autorem 6 publikacji. Pani mgr Sandra Witkiewicz-Łukaszek jest współautorką 9 komunikatów wygłoszonych na konferencjach międzynarodowych (w tym 3 własnych komunikatów) oraz 13 posterów. Doktorantka wygłosiła również 2 seminaria. Dorobek naukowy Doktorantki oceniam bardzo wysoko.

Podsumowując pragnę podkreślić, iż rozprawa doktorska Pani mgr Sandry Witkiewicz-Łukaszek spełnia warunki stawiane rozprawom doktorskim, ponieważ stanowi oryginalne rozwiązanie przez Doktorantkę problemu naukowego, a także wskazuje na Jej ogólną wiedzę teoretyczną oraz umiejętności samodzielnego prowadzenia pracy naukowej. Moim zdaniem rozprawa doktorska Pani mgr Sandry Witkiewicz-Łukaszek w formie cyklu 10 artykułów naukowych spełnia wymagania stawiane rozprawom doktorskim i wnioskuję o dopuszczenie Jej do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

*Marcuś*

