

О применимости материалов на основе тетрабората магния для считывания дозовой информации при оптической стимуляции

В работе исследована возможность считывания детекторов на основе $MgB_4O_7:Dy,Na$ путем оптической стимуляции. Показано, что вследствие освобождения светом из ловушек электронов вместо дырок оптически стимулированная люминесценция не наблюдается, несмотря на эффективное стирание светом кривых термостимулированной люминесценции. По аналогии с $MgB_4O_7:Tm$ дана модель процессов, происходящих при термолюминесценции.

Ключевые слова:

термолюминесценция, дозиметрия, оптически стимулированная люминесценция, тетраборат магния, $MgB_4O_7:Dy,Na$

И.А.Захарчук^{1,2}, М.И.Данилкин^{1,3},
А.С.Селюков^{1,2,4}, О.В.Ивкина⁵,
И.В.Мосягина⁵

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, г. Москва

² МГТУ им. Н.Э. Баумана, г. Москва

³ Московский физико-технический институт, г. Долгопрудный, Московская область

⁴ Московский политехнический университет, г. Москва

⁵ АО «СНИИП», г. Москва

При протонно-лучевой терапии опухолей для планирования облучения пациентов нужна простая и удобная метрология протонного пучка, особенно в области Брэгговского пика, причем желательно непосредственно в тканеэквивалентном фантоме. Хорошо зарекомендовавшие себя запоминающие рентгеновские экраны [1-3] на основе флюоробрида бария с европием могут искажать распределение дозы в области Брэгговского пика, поскольку их материал далек от тканеэквивалентности, и его отклик имеет значительный «ход с жесткостью», и даже хуже того, взаимодействие возбуждений в треке частиц с высокой плотностью ионизации

порождает нелинейность отклика [3]. Наилучшими параметрами с точки зрения тканеэквивалентности обладают фтористый литий, а также тетрабораты лития и магния. Однако возникает следующий вопрос: насколько удобно визуализировать распределение дозы, можно ли изготовить из этих «идеальных» материалов запоминающий экран со считыванием под действием оптической стимуляции?

Если начать с детекторов на основе фторида лития (от ТЛД-100 до ДТГ-4), то с этими материалами все не так просто, и существуют только весьма нестандартные решения. Фторид лития, как и все щелочно-галогидные кристаллы, имеет характерную особенность: перемещение дырки в валентной зоне сопровождается значительным смещением галогена с образованием молекулярного иона из двух соседних галогенов. При высокой плотности дефектов в треке протона формируются агрегаты из дефектов, возникают запертые молекулы фтора и кластеры металлического лития, а также большое количество анионных вакансий и их агрегатов. Именно дефекты на основе анионных вакансий (F-центров и их ассоциатов) предлагалось использовать для визуализации треков протонов и тяжелых частиц в монокристаллах фторида лития [4], поскольку некоторые из таких дефектов дают достаточно яркую флюоресценцию при оптическом возбуждении. Однако о классической дозиметрии путем термической (ТСЛ) или оптической (ОСЛ) стимуляции высвечивания не может быть и речи, поскольку в треках возникает большое количество дефектов кристаллической структуры, которые необратимо аккумулируют в себе заметную часть энергии, и устранить эти дефекты можно разве что только переплавкой материала.

Детекторы на основе тетрабората лития (например, ТЛД-800) чаще всего изготавливаются в виде керамики, но даже если сделать мелкокристаллический порошкообразный

люминофор, пригодный для создания запоминающих экранов, мы столкнемся с другой трудностью. Несмотря на то, что принципиальная возможность считывания в режиме ОСЛ для $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ была показана [5], величина сигнала ОСЛ очень мала и сильно зависит от температуры из-за наличия так называемого «транспортного», или «рекомбинационного» барьера [6]. Если бы запоминающий экран удалось равномерно подогреть и стабилизировать его температуру, то считывание оптической стимуляцией было бы возможно, но вряд ли это удобно на практике (хотя для считывания керамических детекторов это было бы приемлемо). Что касается ОСЛ от тетрабората лития с серебром, либо с медью [7-10], то в этом случае запоминающий экран можно было бы считывать и при обычной температуре, если бы не ряд значительных препятствий: технология таких материалов не может считаться надежно отработанной, материалы обладают сложной кривой ТСЛ с избытком пиков, которые к тому же под действием оптической стимуляции стираются с совершенно разной скоростью [9,10]. То есть эти материалы обладают несколькими различными типами центров захвата, которые конкурируют между собой. Очевидно, такие материалы должны обладать значительной нелинейностью отклика по дозе и по мощности дозы, а потому непригодны для визуализации протонной дозы.

Что же касается тетрабората магния, то здесь ситуация существенно лучше. Тетраборат магния с различными редкоземельными активаторами широко исследуется [11-22], отработано много различных технологий синтеза мелкокристаллического материала [11-18], пригодного для изготовления запоминающих экранов. Более того, ОСЛ уверенно регистрировалась для тетрабората магния с церием [19] и тетрабората магния с тербием [20]. Наконец, тетраборат магния с церием и литием

уже был предложен для визуализации дозы протонных пучков [22]. Если же говорить о производстве детекторов на основе тетрабората магния в России, то следует отметить ТЛД-580, в котором в роли активатора выступает диспрозий (а соактиватором является натрий). Наличие отработанной технологии детекторов на основе $MgB_4O_7:Dy,Na$ и имеющаяся информация о светочувствительности этого материала заставила нас провести более подробные исследования детекторов на основе $MgB_4O_7:Dy,Na$ на предмет возможности считывания дозы при оптической стимуляции.

Экспериментальные образцы и установки

Детекторы, использованные при проведении исследований, были изготовлены лабораторией детекторов АО «СНИИП» (ТЛД-580н). Для изготовления $MgB_4O_7:Dy,Na$ был разработан эффективный метод вторичного допирования основного тетрабората ($MgB_4O_7:Dy$) ионами натрия. Термолюминофор $MgB_4O_7:Dy$ синтезировался из стехиометрической смеси борной кислоты и магния углекислого путем тщательного перетирания и последующего введения ионов диспрозия через технологию импрегнации. Вторичное допирование ионами натрия производилось через смешивание растворов $MgB_4O_7:Dy$ и Na_2CO_3 , полученная смесь затем выпаривалась, порошок отжигался в высокотемпературной печи и многократно перетирался в фарфоровой ступке. Полученный люминофор ТЛД-580н в необходимом количестве помещался в алюминиевые кюветы (подложки) диаметром 5 мм (либо 10 мм для исследования спектрального состава ТСЛ) и закреплялся высокотемпературным лаком.

Перед каждым измерением детекторы облучали источником БИС-20 ($^{90}Sr/^{90}Y$) в автоматическом облучателе дозой 0,66 Гр ($0,033 \pm 0,002$ Гр/мин, типовое время облучения 20 минут, калибровка по эталонному

источнику ^{137}Cs в метрологическом отделе АО «СНИИП»). Детекторы после воздействия радиации освещали светодиодами определенной длины волны (всего четыре детектора и три светодиода, 365 нм, 395 нм, 470 нм, при этом каждый из светодиодов воздействовал определенное время на свой выделенный детектор, а четвертый детектор не освещался и использовался для нормировки и контроля воспроизводимости результатов). После воздействия светом измерялась кривая ТСЛ для каждого детектора. Кривые ТСЛ в этом случае измерялись на установке в СНИИП, созданной на основе механической, высоковольтной и преобразующей ток в частоту частей считывателя дозиметров УПФ-02, к которым добавили компьютерное управление температурой через терморегулятор OMRON E5CK, снабженный для связи с компьютером портом RS-232. Импульсы преобразователя «ток–частота» поступали на специальную плату счетчиков, которая считывалась через стандартную плату цифрового ввода–вывода РЮ-D56U. Скорость нагрева на этой установке составляла 0,5 град/с.

Для исследования спектрального состава ТСЛ детекторы облучали двумя–тремя импульсами портативного электронного ускорителя «РАДАН-ЭКСПЕРТ» (энергия электронов 90–240 кэВ, максимум распределения около 160 кэВ, длительность импульса 2 нс, флюенс $5 \cdot 10^{11}$ электронов за 1 импульс [23], что примерно соответствует дозе около 1 кГр на образце диаметром 10 мм). Облученный образец считывался с помощью считывателя ДВГ-02ТМ (НПП «Доза»). Прибор был приспособлен для работы с большими дозами и для измерения спектров свечения. Нагрузка на ФЭУ (9924 В, спектральный диапазон 290–650 нм) была уменьшена при помощи установки диафрагмы (примерно 1:50). Между ФЭУ и нагревателем поместили вставку с кварцевой линзой, отводящую часть излучения через кварцевый световод к портативному

спектрометру Ocean Optics Maya 2000 Pro. Спектрометр регистрировал спектральный состав пиков ТСЛ в диапазоне 230–1000 нм при скорости нагрева 2 град/с. Синхронизация запуска спектрометра с нагревом образца осуществлялась специальной гальванически изолированной схемой, которая срабатывала по конечному выключателю завершения подъема нагревателя в приборе ДВГ-02ТМ.

ОСЛ исследовалась на установке, в которой возбуждение происходило через монохроматор спектрофлуориметра Hitachi 650-60 с ксеноновой лампой мощностью 150 Вт. Излучение записывалось через кварцевое оптоволокно диаметром 0,8 мм спектрометром Ocean Optics Maya 2000 Pro. Такая комбинация позволяла получить разрешенный по спектру сигнал при каждой длине волны возбуждения. Вводилась также энергетическая поправка на чувствительность спектрометра к свету в разных диапазонах длин волн. На этой же установке изучалась фотолюминесценция исследуемых образцов.

Светодиоды LUXEON III Star (производитель Lumiled), которыми производилось освещение облученных детекторов в экспериментах по оптическому «стиранию» кривой ТСЛ,

были снабжены объективами, собирающими излучение в узкий пучок. Для светодиода ультрафиолетового диапазона (365 нм) были использованы кварцевые линзы. Светодиоды были откалиброваны по исходящему из оптической системы световому потоку таким образом, чтобы из каждого объектива выходил поток $3,5 \cdot 10^{15}$ фотонов в секунду. Для этого были измерены токовые зависимости оптической мощности для каждого светодиода, оптическая мощность измерялась болометрическим измерителем фирмы *Coherent*, которому каждый раз задавался спектральный диапазон, соответствующий спектру излучения исследуемого светодиода, что обеспечивало автоматическое введение этим прибором поправок. Затем для каждого светодиода был измерен спектр излучения с помощью спектрометра Ocean Optics Maya 2000 Pro, спектры исправлены на чувствительность прибора и пересчитаны в распределение фотонов с соответствующей энергией. После чего зависимости оптической мощности от тока пересчитаны в зависимости потока фотонов от тока, и для питания каждого из светодиодов был выставлен такой ток, чтобы у всех трех светодиодов был одинаковый поток фотонов ($3,5 \cdot 10^{15}$ фот/с). Этот поток соответствует

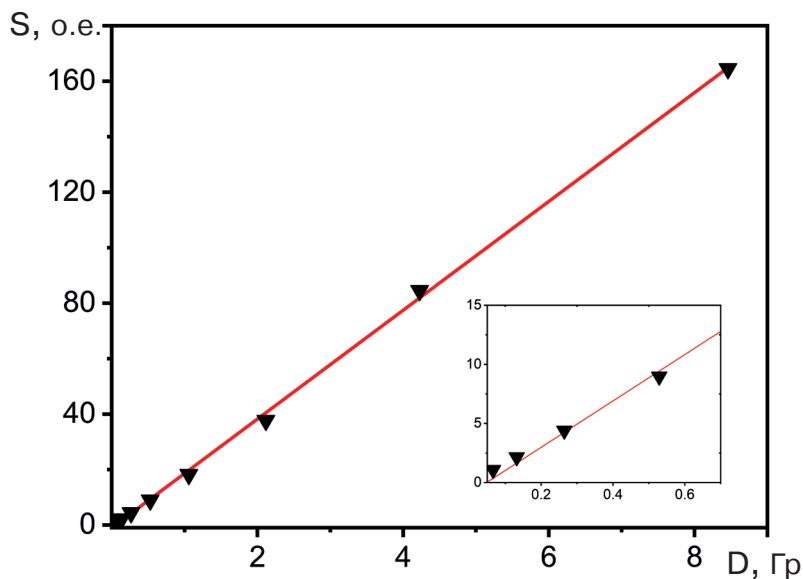


Рис. 1. Отклик детекторов ТЛД-580и на дозу радиации (площадь под рабочим пиком ТСЛ около 450 К). На врезке — начальный участок дозовой зависимости отклика.

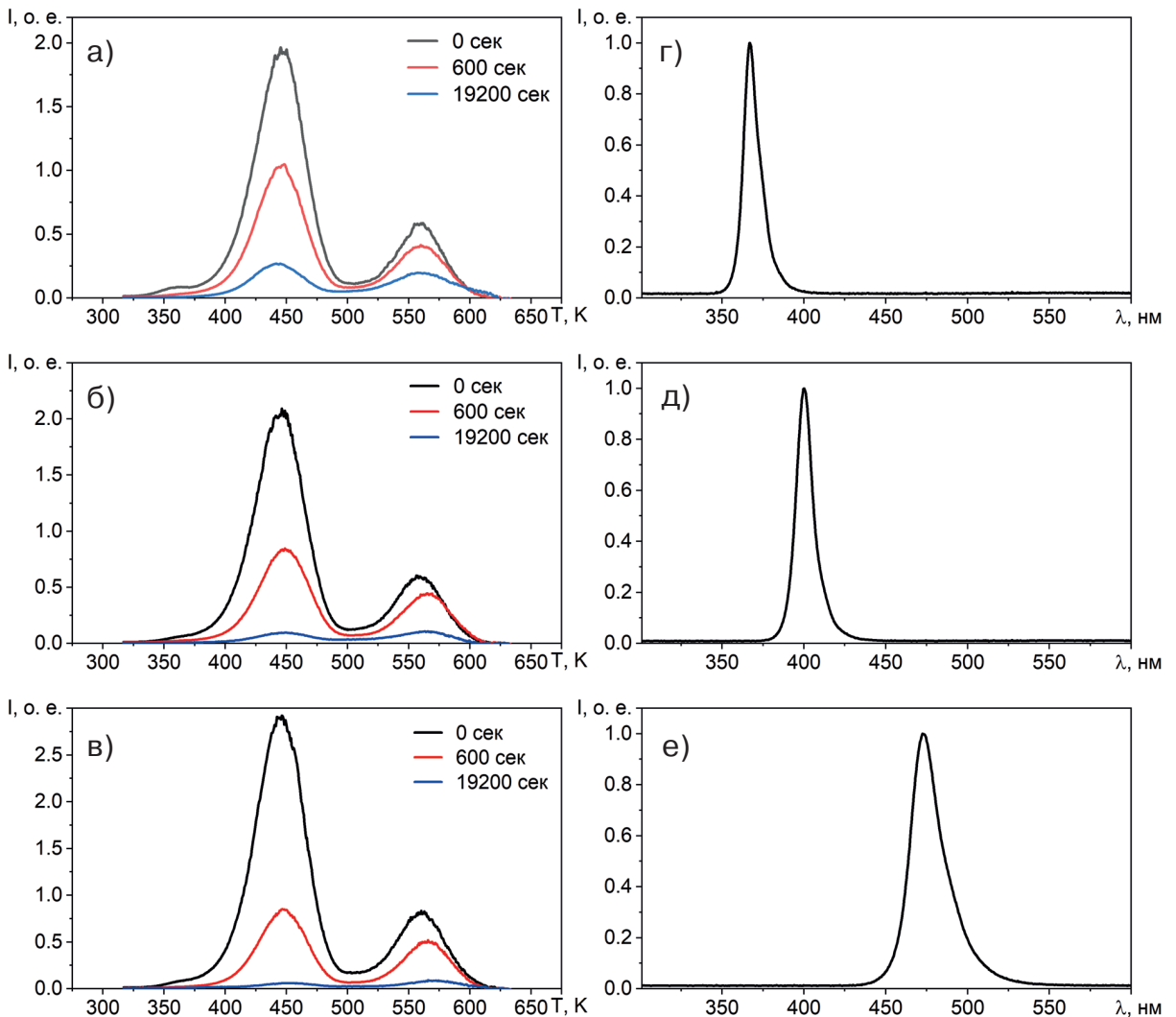


Рис.2. Стирание кривой ТСЛ у детекторов ГЛД-580н (а,б,в) светом светодиода. Справа от кривых ТСЛ показаны спектры (г,д,е) соответствующих светодиодов, которыми производилось воздействие. Время воздействия подписано в легендах на соответствующих графиках.

потоку для ультрафиолетового светодиода (365 нм) в его рабочем режиме (у этого светодиода самая низкая оптическая мощность и эффективность из всех трех светодиодов). Как измерение светового потока, так и облучение детекторов производилось в одной и той же позиции, притом таким образом, чтобы в обоих случаях использовался весь выходящий из оптической системы поток. Для точной фиксации детекторов в этой позиции были изготовлены специальные трубчатые насадки на оптическую систему, имеющие гнездо для детектора.

Результаты и их обсуждение

Зависимость отклика детекторов от дозы была исследована при облучении источником БИС-20 ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) в автоматическом облучателе ($0,033 \pm 0,002$ Гр/мин), время облучения варьировалось в широких пределах и доходило до нескольких часов. Отклик детектора S вычислялся как площадь под рабочим пиком ТСЛ (в относительных единицах). Результат представлен на рис.1.

Площадь под рабочим пиком ТСЛ (рис.2, около 450 К) линейно зависит от дозы, и точность линейной аппроксимации хорошая

(скорректированный коэффициент детерминации $R^2 = 0,999$). Линейность отклика для данных детекторов априори нельзя было считать очевидной, поскольку на кривой ТСЛ присутствует также и более высокотемпературный пик (см. рис.2, около 560–670 К), что указывает на наличие нескольких типов центров захвата и возможную конкуренцию между ними. Такая конкуренция часто приводит к нелинейной зависимости отклика от дозы, и в особенности от мощности дозы. Однако мы не наблюдали рекомбинационного взаимодействия между разными типами центров даже при оптическом стирании кривой ТСЛ (см. ниже), что указывает, вероятно, на разную природу центров захвата, соответствующих этим пикам, и на разные механизмы высвечивания.

Оптическое стирание кривой ТСЛ исследовалось при воздействии трех светодиодов с разными спектрами излучения. Уничтожение светом кривой ТСЛ показано на рис.2 (а,б,в, слева), а спектры излучения этих светодиодов, воздействовавших на детекторы, показаны на рис.2 (г,д,е, справа). С учетом того факта, что поток квантов света от каждого светодиода был выставлен одинаковым ($3,5 \cdot 10^{15}$ фот/с), можно сказать, что эффективность стирания кривой ТСЛ в ультрафиолете ниже, чем в синей области. Такое пове-

дение не характерно для дырочных центров захвата, формируемых в борокислородном каркасе, например, у тетрабората лития, где дырки освобождаются именно ультрафиолетом в области 365 нм [5]. При этом эффективность воздействия света как на рабочий, так и на более высокотемпературный пик ТСЛ, примерно одинаковая, что указывает на отсутствие переселения носителей заряда (рекомбинационного взаимодействия ловушек) при воздействии света. Оба вышеуказанных факта настораживают и позволяют усомниться в получении эффективного сигнала при ОСЛ, поскольку очень вероятно, что свет снимает носители заряда не того знака, который нужен для эффективной излучательной рекомбинации (электроны вместо дырок). Ниже мы увидим дополнительные подтверждения этой гипотезы.

Проверку сигнала ОСЛ производили на тех же длинах волн стимулирующего света, что были у светодиодов, эффективно стиравших кривую ТСЛ (365, 395 и 470 нм). Стимулирующий свет от ксеноновой лампы попадал на детектор через монохроматор возбуждения спектрофлюориметра Hitachi 650-60, а регистрация сигнала производилась в широком спектральном диапазоне с помощью портативного спектрометра Ocean Optics Maya 2000 Pro. Поскольку детекторы предварительно

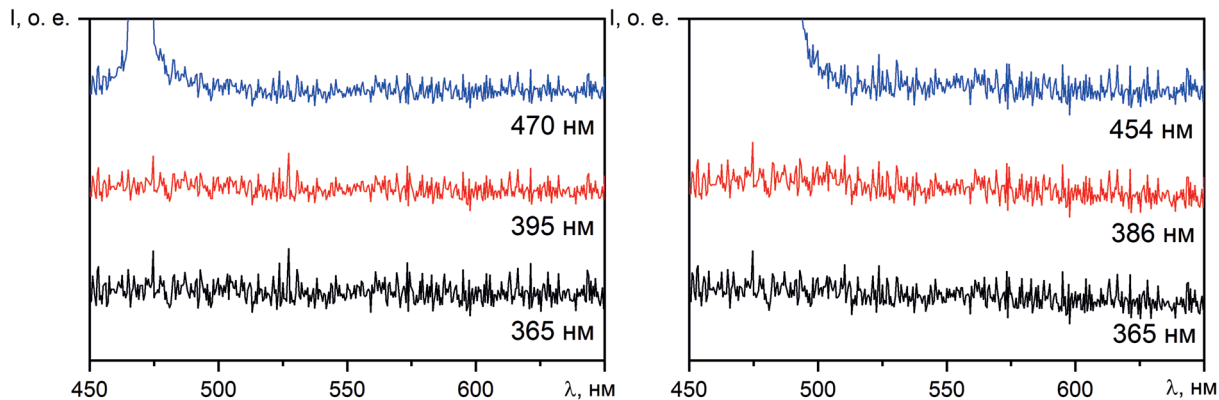


Рис.3. Отсутствие ОСЛ (под действием стимулирующего света 365, 395 и 470 нм) и ФЛ (при возбуждении светом 365, 386 и 454 нм) у детекторов на основе $MgB_4O_7:Du,Na$.

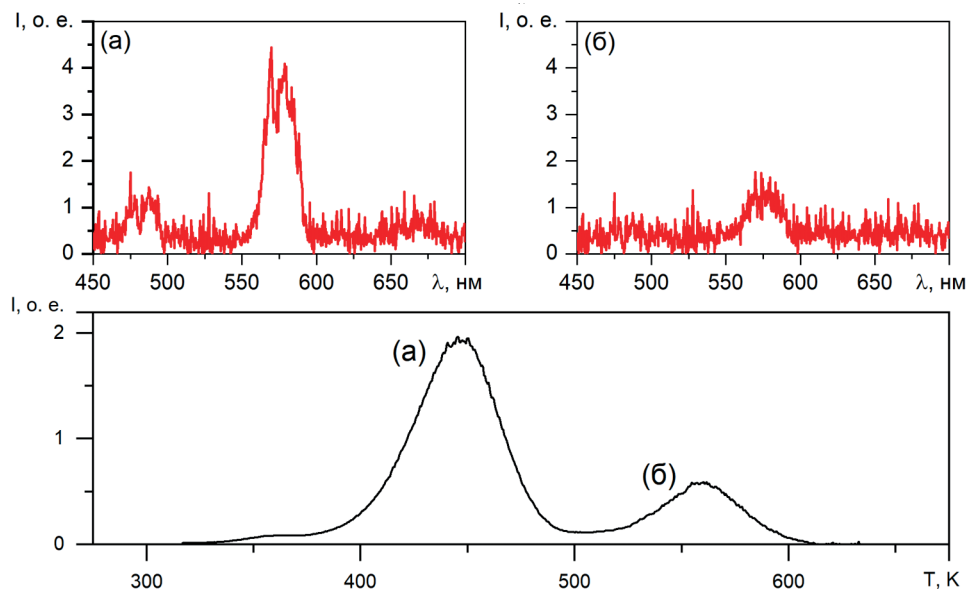
были облучены большой дозой ионизирующего излучения (1–3 кГр в портативном ускорителе РАДАН), чувствительности спектрометра должно хватать для регистрации сигнала ОСЛ. Однако никакого сигнала ОСЛ зарегистрировано не было (рис.3), хотя стимулирующий свет был даже более интенсивным, чем при использовании светодиодов. На рис.3 показаны участки спектра, где обычно проявляются наиболее интенсивные линии спектра излучения Dy^{3+} (около 485 нм, переход ${}^4F_{9/2} \rightarrow {}^6H_{15/2}$, и около 575 нм, переход ${}^4F_{9/2} \rightarrow {}^6H_{13/2}$), хорошо наблюдаемые при фотолюминесценции (ФЛ) Dy^{3+} в боратных [24], фторборатных [25] и теллуру-боратных [26] стеклах. Эти линии не удалось обнаружить также и в спектре ФЛ исследуемых детекторов при возбуждении в области 365 нм, 386 нм и 454 нм, где ФЛ Dy^{3+} хорошо возбуждается в стеклах [24-26].

Возникает естественный вопрос, что же тогда светит при ТСЛ, и каковы механизмы эффективного стирания кривой ТСЛ светом? Спектры свечения при ТСЛ, однако, зарегистрировать удалось, и в этом случае можно с уверенностью сказать, что светит именно Dy^{3+} (см. рис.4).

Таким образом, люминесценция Dy^{3+} проявляется только при ТСЛ и отсутствует при

оптическом возбуждении до облучения детекторов ионизирующим излучением. Такое поведение уже было ранее известно для тетрабората магния с туллем, где туллий присутствует в состоянии $2+$ до облучения и перезаряжается в Tm^{3+} с одновременным возбуждением и последующим высвечиванием лишь при захвате дырки (либо в случае радиолюминесценции, либо в процессе термовысвечивания) [27]. Очевидно, у тетрабората магния с диспрозием наблюдается точно такая же картина. Механизмы процессов были выяснены авторами работы [27] с использованием метода ЭПР. Основной рабочий пик наблюдался около 470 К (сдвиг по температуре в сравнении с нашими данными связан с высокой скоростью нагрева, которая в работе [27] была 2,5 град/с против наших 0,5 град/с). Прохождение этого пика совпало с разрушением хорошо известного дырочного центра захвата, обозначенного авторами как VO_3^{2-} . Помимо этого дырочного центра, авторы [27] наблюдали пероксидный центр O^{2-} , который разрушается выше 600 К и связывается, например, для легированного марганцем тетрабората лития (ТЛД-800) с радиационным разрушением борокислородного каркаса [28]. Что касается основного электронного центра

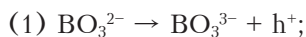
Рис.4. Кривая ТСЛ и спектры люминесценции (на вставках), соответствующие пикам ТСЛ, для детекторов ТЛД-580и на основе $MgB_4O_7:Dy,Na$.



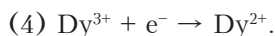
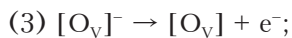
захвата, то авторы [27] предполагают, что это захваченный кислородной вакансией электрон $[O_V]^-$. Эти центры отдают электрон при температуре немного выше рабочего пика ТСЛ, примерно около 500 К [27]. Переноса предложенную авторами работы [27] схему на случай $MgB_4O_7:Dy,Na$, имеем:

При воздействии ионизирующего излучения: $MgB_4O_7:Dy^{2+} \rightarrow VO_3^{2-}, O^{2-}, [O_V]^-$ и некоторое количество Dy^{3+} .

При нагреве до прохождения основного пика ТСЛ около 450 К:



(2) $Dy^{2+} + h^+ \rightarrow [Dy^{3+}]^* \rightarrow Dy^{3+} + hv$ (основной рабочий пик ТСЛ при 450 К);



Заметим, что освобождение электронов в данной схеме требуется лишь для приведения материала в исходное состояние, но не для получения сигнала ТСЛ. Если же электроны будут освобождены раньше дырок (например, под действием света), то никакого сигнала ТСЛ после этого может и не быть, так как рекомбинация электронов с дырками на дырочных центрах захвата уничтожает требуемые для ТСЛ дырки. Более того, поскольку эта рекомбинация, вероятнее всего, безызлучательная, то и сигнала ОСЛ при этом не появится, несмотря на наблюдаемое эффективное стирание кривой ТСЛ под воздействием света. Таким образом, данная модель хорошо объясняет экспериментальные результаты.

Следует отметить, что в литературе можно найти свидетельства радиoluminesценции Dy^{3+} в тетраборате магния [12,29], а также видеть спектр свечения Dy^{3+} при термoluminesценции [12,30], но фотoluminesценция Dy^{3+} в тетраборате магния до воздействия радиацией отмечена лишь в двух работах [31,32]. Оба эти случая относятся к наноразмерным кристаллам тетрабората магния, где и ширина запрещенной зоны, и возможные механизмы

стабилизации зарядового состояния примесного диспрозия иные, чем в материалах, не обладающих размерными эффектами.

Таким образом, тетраборат магния с диспрозием, изготавливаемый по стандартной технологии в виде кристаллического порошка (ТЛД-580, ТЛД-580н), очевидно, не годится для создания запоминающих экранов с оптической стимуляцией считывания, поскольку он содержит диспрозий преимущественно в зарядовом состоянии $2+$, что позволяет высвечивать запасенную под действием радиации энергию только путем нагрева, а воздействие света на люминофор лишь «стирает» информацию. Тем не менее, в классе люминофоров на основе тетрабората магния с редкоземельными примесями существуют как минимум два кандидата для создания подобных экранов. Во-первых, это довольно хорошо уже изученный и почти доведенный до практического применения $MgB_4O_7:Ce,Li$ [19,22,33-35], на основе которого уже делались пробные экраны для 2D дозиметрии [35]. Во-вторых, это гораздо менее изученный тетраборат магния с тербием, по которому существует немного публикаций (например, [20,36]), но уже продемонстрирована уверенная регистрация сигнала ОСЛ [20]. Следует отметить, что для обоих люминофоров характерно то, что фотoluminesценция примесного редкоземельного иона в состоянии $3+$ (либо Ce^{3+} , либо Tb^{3+}) наблюдается до какого-либо воздействия проникающей радиации [20,33,36], то есть редкоземельная примесь с самого начала стабилизирована в состоянии $3+$. Для понимания, какие редкоземельные примеси, при каких условиях и в каком зарядовом состоянии входят в тетраборат магния, требуется систематическое изучение этого вопроса. Это позволит разумным образом расширить (или ограничить) поиск люминофоров на основе тетрабората магния, пригодных для создания запоминающих экранов.

Заключение

Эффективное оптическое «стирание» кривой ТСЛ у детекторов ТЛД-580н не сопровождается их люминесценцией, то есть, оптическая стимуляция считывания для этого материала невозможна. Это связано с зарядовым состоянием диспрозия, который исходно стабилизирован в матрице в состоянии 2+. Аналогичная ситуация известна для термолуминофора $MgB_4O_7:Tm$ [27], для которого был выяснен механизм термолуминесценции, основанный на перезарядке туллия при термическом освобождении дырки из ловушки. В случае $MgB_4O_7:Dy,Na$, очевидно, механизм тот же, а при оптической стимуляции вместо дырок освобождаются электроны, которые

уничтожают дырки на центрах захвата. Это дает «стирание» кривой ТСЛ, но не приводит к оптически стимулированной люминесценции. Поэтому термолуминофор, используемый в детекторах ТЛД-580 (ТЛД-580н), не пригоден для изготовления запоминающих экранов. Среди люминофоров на основе тетрабората магния с редкоземельными примесями наиболее перспективными для создания запоминающих экранов должны быть $MgB_4O_7:Tb$ и $MgB_4O_7:Ce$, где редкоземельная примесь исходно стабилизируется в состоянии 3+.

Работа была поддержана в рамках проекта Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, грант № 075-11-2021-086.

Литература

1. J. Miyahara, K. Takahashi, Y. Amemiya et al., «A new type of X-ray area detector utilizing laser stimulated luminescence», *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, vol. 246, no. 1-3, pp. 572-578, 1986.
2. R.H. Templer, «Measurements on some characteristics of BaFBr: Eu^{2+} , relevant to its use as a storage phosphor for X-ray diffraction imaging», *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, vol. 300, no. 2, pp. 357-366, 1991.
3. M. Batentschuk, A. Winnacker, K. Schwartz, C. Trautmann, «Storage efficiency of BaFBr: Eu^{2+} image plates irradiated by swift heavy ions», *J. Lumin.*, vol. 125, no. 1-2, pp. 40-44, 2007.
4. P. Bilski, B. Marczevska, W. Gieszczyk et al., «Fluorescent imaging of heavy charged particle tracks with LiF single crystals», *J. Lumin.*, vol. 213, pp. 82-87, 2019.
5. M. Danilkin, I. Jaek, M. Kerikmde et al., «Storage mechanism and OSL-readout possibility of $Li_2B_4O_7:Mn$ (TLD-800)», *Radiat. Meas.*, vol. 45, no. 3-6, pp. 562-565, 2010.
6. Селоков А.С., Применко А.Э., Гарденина Т.А., Данилкин М.И. Роль затрудненного транспорта носителей заряда в кинетике термо- и оптически стимулированной люминесценции // Краткие сообщения по физике Физического института им. П.Н. Лебедева Российской Академии Наук. 2020. Т. 47. № 11. С. 37-45.
7. G.D. Patra, S.G. Singh, B. Tiwari et al., «Optically stimulated luminescence in Ag doped $Li_2B_4O_7$ single crystal and its sensitivity to neutron detection and dosimetry in OSL mode», *Radiat. Meas.*, vol. 88, pp. 14-19, 2016.
8. B.E. Kananen, E.S. Maniego, E.M. Golden et al., «Optically stimulated luminescence (OSL) from Ag-doped $Li_2B_4O_7$ crystals», *J. Lumin.*, vol. 177, pp. 190-196, 2016.
9. N.S. Rawat, M.S. Kulkarni, M. Tyagi et al., «TL and OSL studies on lithium borate single crystals doped with Cu and Ag», *J. Lumin.*, vol. 132, no. 8, pp. 1969-1975, 2012.
10. T. Ayd n, H. Demirta , S. Aydin, «TL/OSL studies of $Li_2B_4O_7:Cu$ dosimetric phosphors», *Radiat. Meas.*, vol. 58, pp. 24-32, 2013.
11. L.F. Souza, R.M. Vidal, S.O. Souza, D.N. Souza, «Thermoluminescent dosimetric comparison for two different $MgB_4O_7:Dy$ production routes», *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 104, pp. 100-103, 2014.

12. E.G. Yukihara, E.D. Milliken, B.A. Doull, «Thermally stimulated and recombination processes in MgB_4O_7 investigated by systematic lanthanide doping», *J. Lumin.*, vol. 154, pp. 251-259, 2014.
13. Y.S. Kawashima, C.F. Gugliotti, M. Yee et al., «Thermoluminescence features of $MgB_4O_7:Tb$ phosphor», *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 95, pp. 91-93, 2014.
14. P.D. Sahare, M. Singh, P. Kumar, «Synthesis and TL characteristics of $MgB_4O_7:Mn,Tb$ phosphor», *J. Lumin.*, vol. 160, pp. 158-164, 2015.
15. S. Iflazoglu, A. Yilmaz, V.E. Kafadar et al., «Neutron+Gamma response of undoped and Dy doped MgB_4O_7 thermoluminescence dosimeter», *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 147, pp. 91-98, 2019.
16. O. Legorreta-Alba, E. Cruz-Zaragoza, D. Diaz, J. Marcaczy, «Synthesis of $MgB_4O_7:Dy^{3+}$ and thermoluminescent characteristics at low doses of beta radiation», *J. Nucl. Phys. Mater. Sci. Radiat. Appl.*, vol. 6, no. 1, pp. 71-76, 2018.
17. Субанакоев А.К., Базаров Б.Г., Перевалов А.В., Базарова Ж.Г. Синтез термолуминофоров на основе $MgB_4O_7:Dy$ // Успехи современного естествознания. 2016. № 12. С. 36-41.
18. Перевалов А.В., Базаров Б.Г. Синтез и исследование бората магния, активированного диспрози-ем // Неорганические материалы. 2014. Т. 50. № 5. С. 525-528.
19. E.G. Yukihara, B.A. Doull, T. Gustafson et al., «Optically stimulated luminescence of $MgB_4O_7:Ce,Li$ for gamma and neutron dosimetry», *J. Lumin.*, vol. 183, pp. 525-532, 2017.
20. C.B. Palan, S.K. Omanwar. Synthesis and preliminary TL/OSL properties of $MgB_4O_7:Tb^{3+}$ phosphor for radiation dosimetry. 2nd National Conference Recent Innovations in Science and Engineering (NC-RISE 17), Shegaon, Maharashtra, India, 2017.
21. G.F. Bispo, D.S. Nascimento, L.B. Santana et al., «Defects in MgB_4O_7 (pure and doped with lanthanides): A case study using a computational modelling approach», *Phys. B*, vol. 640, 414049, 2022.
22. E.G. Yukihara, J.B. Christensen, M. Togno, «Demonstration of an optically stimulated luminescence (OSL) material with reduced quenching for proton therapy dosimetry: $MgB_4O_7:Ce,Li$ », *Radiat. Meas.*, vol. 152, 106721, 2022.
23. Афанасьев В.Н., Бычков, В.Б., Ларцев В.Д. и др. Параметры электронных пучков, генерируемых ускорителями РАДАН-220 и РАДАН-ЭКСПЕРТ // Приборы и техника эксперимента. 2005. № 5. С. 88-92.
24. A. Balakrishna, D. Rajesh, Y.C. Ratnakaram, «Structural and photoluminescence properties of Dy^{3+} doped different modifier oxide-based lithium borate glasses», *J. Lumin.*, vol. 132, no. 11, pp. 2984-2991, 2012.
25. J.S. Kumar, K. Pavani, A.M. Babu et al., «Fluorescence characteristics of Dy^{3+} ions in calcium fluoroborate glasses», *J. Lumin.*, vol. 130, no. 10, pp. 1916-1923, 2010.
26. M.V. Kumar, B.C. Jamalaih, K.R. Gopal, R.R. Reddy, «Optical absorption and fluorescence studies of Dy^{3+} -doped lead telluroborate glasses», *J. Lumin.*, vol. 132, no. 1, pp. 86-90, 2012.
27. N.K. Porwal, R.M.Kadam, T.K. Seshagiri et al., «EPR and TSL studies on MgB_4O_7 doped with Tm: role of BO_3^{2-} in TSL glow peak at 470 K», *Radiat. Meas.*, vol. 40, no. 1, pp. 69-75, 2005.
28. M.I. Danilkin, Y.A. Koksharov, I. Romet et al., «Manganese agglomeration and radiation damage in doped $Li_2B_4O_7$ », *Radiat. Meas.*, vol. 126, 106134, 2019.
29. L.F. Souza, A.M.B. Silva, P.L. Antonio et al., «Dosimetric properties of $MgB_4O_7:Dy,Li$ and $MgB_4O_7:Ce,Li$ for optically stimulated luminescence applications», *Radiat. Meas.*, vol. 106, pp. 196-199, 2017.
30. T. Karali, A.P. Rowlands, M. Prokic et al., «Thermoluminescent spectra of rare earth doped MgB_4O_7 doseimeters», *Radiat. Prot. Dosim.*, vol. 100, no. 1-4, pp. 333-336, 2002.
31. S.P. Lochab, A. Pandey, P.D. Sahare et al., «Nanocrystalline $MgB_4O_7:Dy$ for high dose measurement of gamma radiation», *Phys. Status Solidi A*, vol. 204, no. 7, pp. 2416-2425, 2007.

32. S. Bahl, A. Pandey, S.P. Lochab et al., «Synthesis and thermoluminescence characteristics of gamma and proton irradiated nanocrystalline $MgB_4O_7:Dy,Na$ », *J. Lumin.*, vol. 134. pp. 691-698, 2013.
33. T.D. Gustafson, E.D. Milliken, L.G. Jacobsohn, E.G. Yukihiro, «Progress and challenges towards the development of a new optically stimulated luminescence (OSL) material based on $MgB_4O_7:Ce,Li$ », *J. Lumin.*, vol. 212, pp. 242-249, 2019.
34. L.F. de Souza, D.N. Souza, G.B. Rivera et al., «Dosimetric characterization of $MgB_4O_7:Ce,Li$ as an optically stimulated dosimeter for photon beam radiotherapy», *Perspect. Sci.*, vol. 12, 100397, 2019.
35. N. Shrestha, D. Vandenbroucke, P. Leblans, E.G. Yukihiro, «Feasibility studies on the use of $MgB_4O_7:Ce,Li$ -based films in 2D optically stimulated luminescence dosimetry», *Phys. Open*, vol. 5, 100037, 2020.
36. Y.S. Kawashima, C.F. Gugliotti, M. Yee et al., «Thermoluminescence features of $MgB_4O_7:Tb$ phosphor», *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 95, pp. 91-93, 2014.

Luminescent Dosimetric Materials Based on Magnesium Tetraborate for Proton Beam Metrology

Zaharchuk Ivan^{1,2}, Danilkin Mikhail^{1,3}, Selyukov Alexandr^{1,2,3}, Ivkina Olga⁵, Mosyagina Irina⁵

¹ P.N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

² Bauman Moscow State Technical University, Moscow, Russia

³ P.N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

⁴ Moscow Polytechnic University, Moscow, Russia

⁵ Joint-Stock Company Specialized Scientific Research Institute for Instrumentation Engineering, Moscow, Russia

Abstract. The possibility of optical readout has been studied for the detectors based on $MgB_4O_7:Dy,Na$. It is shown that due to the release of electrons from traps instead of holes under illumination by light, optically stimulated luminescence is not observed, despite effective erasing of thermally stimulated luminescence glow curves by light. By analogy with $MgB_4O_7:Tm$, a model of the processes occurring during thermoluminescence is presented.

Key words: thermoluminescence, dosimetry, optically stimulated luminescence, magnesium tetraborate, $MgB_4O_7:Dy,Na$.

И.А.Захарчук (м.н.с.)^{1,2}, М.И.Данилкин (с.н.с.)^{1,3}, А.С.Селюков (к.ф.-м.н., м.н.с., ст.преп.)^{1,2,4}, О.В.Ивкина (химик-техн.)⁵, И.В.Мосягина (нач.лаб.)⁵

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, г. Москва

² МГТУ им. Н.Э. Баумана, г. Москва

³ Московский физико-технический институт, г. Долгопрудный, Московская область

⁴ Московский политехнический университет, г. Москва

⁵ АО «СНИИП», г. Москва

Контакты: e-mail: zaharchukia@yandex.ru.