

ДЕТЕКТОРЫ НА ОСНОВЕ ТЕТРАБОРАТА МАГНИЯ ДЛЯ ДОЗИМЕТРИИ В ТКАНЕЭКВИВАЛЕНТНЫХ ФАНТОМАХ

И.А. Захарчук^{1,2}

zakharchuk@bmstu.ru

С.А. Амброзевич²

ambrozevichsa@lebedev.ru

А.С. Селюков^{1,2,3}

selyukov@bmstu.ru

М.И. Данилкин^{2,4}

mihhail.danilkin@ya.ru

А.В. Осадченко^{2,3}

anna.vl.osadchenko@gmail.com

Д.С. Дайбаге²

daibagya@mail.ru

¹ МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва, Российская Федерация

² ФИАН, Москва, Российская Федерация

³ ВИНТИ РАН, Москва, Российская Федерация

⁴ МФТИ, Долгопрудный, Московская обл., Российская Федерация

Аннотация

Исследованы люминесцентные свойства тетрабората магния, легированного диспрозием и натрием. Синтез образцов происходил методом двухступенчатого введения примесей. Получен дозовый отклик материала $MgB_4O_7:Dy,Na$ для доз облучения вплоть до 8 Гр. Продемонстрирована линейность дозового отклика для $MgB_4O_7:Dy,Na$. Спектральный состав термостимулированной люминесценции образца $MgB_4O_7:Dy,Na$ соответствует спектру излучения Dy^{3+} , но при этом фотолюминесценция при возбуждении на характерных для Dy^{3+} длинах волн, равно как и оптически стимулированная люминесценция Dy^{3+} зарегистрированы не были. Для этого материала обнаружен и проанализирован эффект оптического стирания кривых термовысвечивания с использованием различных источников света. Показано, что свет одинаково воздействует как на рабочий, так и на высокотемпературный пик термостимулированной люминесценции. Проведен анализ теоретических моделей люминесценции для материалов на основе тетраборатов. На основе известной модели найдены положения энергетических уровней редкоземельных элементов в матрице тетрабората. Определены подходящие редкоземельные элементы для использования в качестве примеси при создании материалов с оптическим

Ключевые слова

Тетраборат магния, термически стимулированная люминесценция, оптически стимулированная люминесценция, тканеэквивалентные материалы

считыванием дозовой информации. Аналогичным методом синтезирован $MgB_4O_7:Tb, Li$. Для этого образца получена характерная фотолюминесценция Tb в зарядовом состоянии $3+$. На кривой термовысвечивания доминирует высокотемпературный пик около $300\text{ }^\circ\text{C}$. Спектральный состав свечения также соответствует Tb^{3+}

Поступила 26.10.2023

Принята 12.12.2023

© Автор(ы), 2024

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки России, научный проект 15.СИН.21.0008 (соглашение № 075-11-2021-086)

Введение. Одним из современных методов лечения онкологических заболеваний является протонно-лучевая терапия [1]. Суть метода заключается в воздействии излучением на пораженные новообразованием ткани [2]. Для достижения высокой эффективности метода необходимо максимально эффективно воздействовать на зону опухоли, не затрагивая здоровые ткани. Вследствие концентрированного воздействия радиации в узком пике Брэгга протонная терапия хорошо решает такую задачу. Планирование терапевтических процедур проводится с использованием так называемых фантомов, которые воспроизводят свойства тканей человека по отношению к ионизирующим излучениям [3], при этом требуются точные измерения параметров радиационного поля в зоне пика Брэгга в фантоме. Такие измерения могут осуществляться с помощью детекторов или запоминающих экранов [4]. Подобные экраны могли бы применяться и для определения распределения дозы радиации в низкоэнергетических рентгеновских пучках синхротронного излучения, используемых при радиационной терапии поверхностных новообразований. Если речь идет о техническом применении, то необходимо выделить задачи по юстировке рентгеновской оптики и получению изображений в рентгеновской проекционной микроскопии. В настоящий момент существует несколько вариантов материалов с оптическим считыванием, подходящих для решения подобных задач, например, флюоробромид бария, легированный европием, детекторы на основе оксида алюминия (Al_2O_3) и фтористый литий (LiF), легированный титаном и магнием. Если первые два не обладают тканеэквивалентностью, то последний подвержен высокой степени деградации под воздействием тяжелых частиц [5]. Когда у материала детектора отсутствует тканеэквивалентность, у него имеется пик энергетической зависимости отклика в области малых энергий [6], в результате приходится калибровать детекторы отдельно на каждый диапазон энергий. Это делает невозможной работу в смешанных полях излучения с высоким разбросом энергий.

В то же время для радиационного поля в зоне пика Брэгга характерны большой разброс энергий и наложение на основное поле заметного поля от вторичных процессов. В связи с этим при выборе материала для изготовления детектирующей среды следует обязательно ориентироваться на тканеэквивалентность, а также на простоту считывания, чтобы результаты измерений были не только надежными, но и достаточно оперативными. Для решения задачи может быть использован тетраборат магния, легированный различными примесями [7]. Этот материал широко используется в персональной дозиметрии вместе с примесью-активатором диспрозием (Dy) и соактиватором натрием (Na) [8]. Однако считывание таких детекторов проводили только термическим путем [8]. Если возможно добиться оптически стимулированной люминесценции $MgB_4O_7:Dy,Na$ или MgB_4O_7 с другой подходящей редкоземельной примесью, то можно получить «идеальный» материал для изготовления тканеэквивалентных запорнивающих экранов.

Цель работы — привести результаты исследования возможности оптического считывания $MgB_4O_7:Dy,Na$ и основываясь на них, предложить и другие решения, потенциально позволяющие добиться оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ) для легированного примесями MgB_4O_7 .

Методика эксперимента. Исследуемые образцы представляли собой мелкокристаллический порошок легированного тетрабората магния, нанесенный на дно мелких (высотой около 1 мм) алюминиевых чашечек диаметром 5 и 10 мм. Для создания образцов использовали легированный диспрозием и натрием (либо тербием и литием) тетраборат магния, полученный длительным прокаливанием шихты. Шихта изготовлена из исходных нитрата магния, оксида диспрозия (либо тербия), сульфата натрия (либо нитрата лития), предварительно растворенных в кислой среде, а также борной кислоты, которую добавляли в горячий раствор при непрерывном перемешивании. Впоследствии смесь выпаривали и отжигали несколько раз с многократным перетирированием в агатовой ступке. Температура первого отжига не превышала 600 °С, а последующие отжиги проводили при температуре 800...850 °С. Полученный материал закрепляли высокотемпературным лаком в алюминиевой подложке. Перед получением кривых термовысвечивания (КТВ) образцы облучали источником бета-излучения $^{90}Sr/^{90}Y$ с активностью $\sim 10^{10}$ Бк. Источник размещали в контейнере над автоматическим облучателем, который загружал образцы под пучок бета-излучения на заданное время. В облучатель помещали одновре-

менно четыре образца, один из которых был контрольно-калибрующим. Считывание КТВ образцов выполняли с использованием установки с компьютерным управлением, включающей в себя нагреватель, загрузчик и фотоэлектронный умножитель (ФЭУ) с блоком питания и преобразователем ток–частота от УПФ-02 (СНИИП), терморегулятор *OMRON E5CK* и компьютер с платой P10-D56 и дополнительной платой счетчиков. Скорость нагрева 0,5 град/с. Зависимость отклика детекторов от дозы получали этими же средствами измерения. Для изучения эффективности «стирания» КТВ под воздействием света использовали установку с тремя светодиодами *Luxeon 3 Star (Lumiled)* с длинами волн 365, 395 и 470 нм. Над светодиодами смонтированы объективы для лучшей фокусировки излучения на образцы. Предварительно для каждого светодиода измеряли зависимость светового потока от рабочего тока светодиодов и спектр излучения, после чего для каждого из светодиодов рассчитали и выставили такое значение тока, чтобы у всех светодиодов был одинаковый поток квантов, составляющий $3,5 \cdot 10^{15}$ фотон/с. Три из четырех облученных образцов подвергались воздействию света в течение 150, 1200 и 9600 с, каждый на своей длине волны (365, 395 и 470 нм). Четвертый образец использовали в качестве контрольно-калибровочного и не подвергали воздействию света. После каждого воздействия света считывали КТВ.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) и спектры оптической стимуляции получены с использованием установки, состоящей из спектрофлуориметра *Hitachi 650-60* в качестве источника оптического возбуждения (использованы только входной монохроматор и ксеноновая лампа мощностью 150 Вт) и спектрометра *Ocean Optics Maya 2000 Pro* для регистрации спектров люминесценции [9]. Предварительное облучение образца для исследования оптической стимуляции и спектрального состава термолюминесценции проводили с использованием импульсного электронного ускорителя «РАДАН-ЭКСПЕРТ» со средней энергией электронов 160 кэВ и длительностью импульса 2 нс [10]. Кривые термовысвечивания образцов получены на установке ДВГ-2М (НПП «Доза»). Для определения спектрального состава термолюминесценции между ФЭУ и образцом в этой установке помещали световод, соединенный со спектрометром *Ocean Optics Maya 2000 Pro*.

Результаты и их обсуждение. Дозовая зависимость отклика $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Na}$ приведена на рис. 1. Точки на рисунке соответствуют площади под рабочим пиком термостимулированной люминесценции (ТСЛ). Следует отметить, что на КТВ у исследуемого материала также существует высокотемпературный пик (рис. 2). Как правило, наличие дополнитель-

ного пика приводит к заметным нелинейностям дозовых зависимостей отклика вследствие конкуренции ловушек и переселения носителей заряда. Линейность дозового отклика (см. рис. 1) означает, что два различных пика на КТВ соответствуют разным фазам в образце (присутствие фазы MgB_2O_4 отмечено в [11]). Если различные пики ТСЛ относятся к разным фазам, то между ловушками не может быть рекомбинационного взаимодействия.

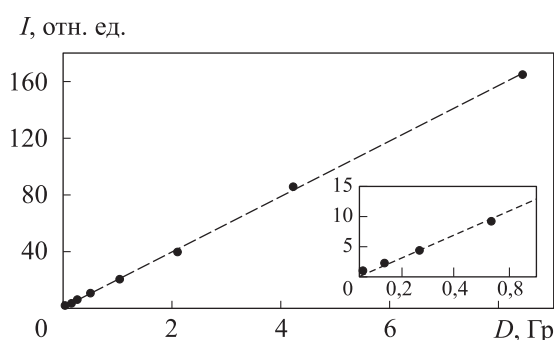


Рис. 1. Дозовая зависимость отклика $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Du,Na}$

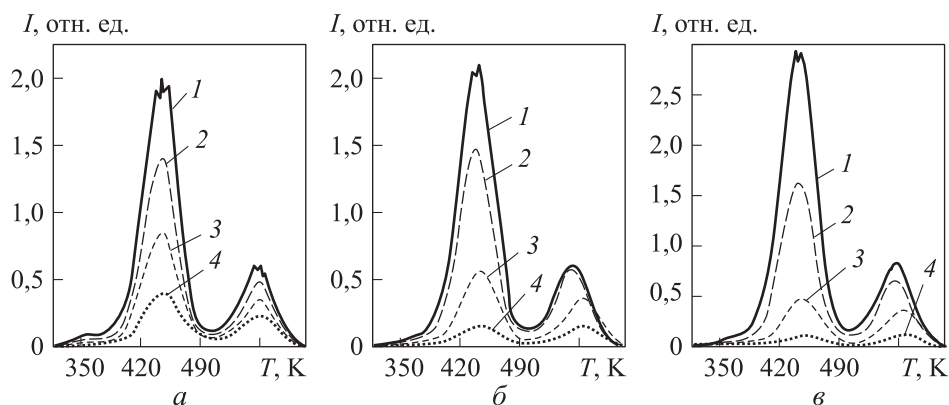


Рис. 2. Кривые ТСЛ и эффект оптического стирания при воздействии светодиодами длиной волны 365 (а), 395 (б) и 470 нм (в) в течение 0 (1), 150 (2), 1200 (3) и 9600 с (4)

Одинаковая эффективность оптического стирания высокотемпературного и рабочего пиков ТСЛ (см. рис. 2) дополнительно подтверждает отсутствие рекомбинационного взаимодействия между разными типами ловушек. С учетом одинаковости светового потока светодиодов можно сделать вывод, что более длинноволновый свет стирает КТВ эффективнее, чем коротковолновый. Однако дырки в боратах освобождаются коротковолновым светом [12]. Это свидетельствует о том, что стирание

КТВ связано со «снятием» с ловушек электронов, а не дырок при воздействии света. В этом случае ОСЛ не будет наблюдаться, так как освобождаемые электроны будут вовлечены в процесс безызлучательной рекомбинации с дырками, находящимися на центрах захвата. В то же время рабочий пик на КТВ может быть связан именно с освобождением дырок [13], поэтому эффективное «стирание» КТВ светом может и не сопровождать ОСЛ.

Для проверки этого предположения необходимо понять, насколько модель, предложенная в [13], применима в рассматриваемом случае. Во-первых, ФЛ Dy^{3+} (рис. 3) действительно отсутствует при характерном для Dy^{3+} возбуждении (454, 386 и 365 нм, см. [14], где приведен спектр возбуждения). Во-вторых, при ТСЛ характерный спектр Dy^{3+} отчетливо проявляется (рис. 3, кривая 4). Такое поведение очень характерно для тулия в MgB_4O_7 [13], что позволяет применить модель, предложенную в этой работе. Модель соответствует случаю, когда при легировании MgB_4O_7 редкоземельными элементами (РЗЭ) они входят в зарядовом состоянии $2+$. Поэтому у исходно не облученных образцов отсутствует ФЛ РЗЭ в состоянии $3+$. Для получения ТСЛ необходимо, чтобы освобождаемые из ловушек дырки захватывались ионами РЗЭ RE^{2+} с их перезарядкой до RE^{3+} , энергетического выигрыша при захвате дырки должно быть достаточно для перевода RE^{3+} в возбужденное состояние RE^{3+*} . Тогда при возврате

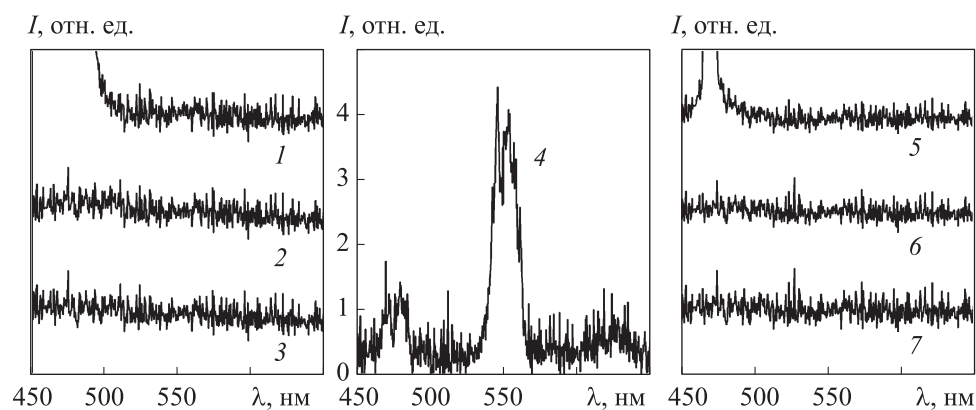


Рис. 3. Отсутствие ФЛ Dy^{3+} у образца $MgB_4O_7:Dy,Na$ при характерном возбуждении на длинах волн 454 (1), 386 (2) и 365 нм (3) и наличие у него спектра Dy^{3+} при ТСЛ (4); отсутствие ОСЛ со спектром Dy^{3+} у предварительно облученных образцов $MgB_4O_7:Dy,Na$ при стимуляции на тех же длинах волн, что и у «стирающих» КТВ светодиодов на длине волны 470 (5), 395 (6) и 365 нм (7)

в основное состояние происходит высвечивание энергии с характерным для RE^{3+} спектром ($RE^{3+*} \rightarrow RE^{3+} + h\nu$). В таком случае освобождения электронов с ловушек для ТСЛ не требуется, это необходимо только для возврата материала в исходное (до облучения) состояние. Обычно восстановление термолюминофора осуществляется отжигом при температуре выше рабочего пика на КТВ.

Следовательно, при подведении теплоты высвобождение дырок сопровождается ТСЛ, при воздействии светом высвобождение электронов уничтожает дырки и препятствует ТСЛ. В связи с этим MgB_4O_7 с РЗЭ в исходном состоянии 2+ непригоден для ОСЛ-дозиметрии.

В некоторых случаях РЗЭ могут входить в матрицу тетрабората магния в зарядовом состоянии 3+ (см., например, [15, 16]). Тогда механизм ТСЛ оказывается несколько иным. Рабочий пик на КТВ по-прежнему дырочный, но электрон оказывается захвачен на глубокой ловушке недалеко от RE^{3+} , рекомбинация освобожденной дырки и захваченного электрона происходит рядом с RE^{3+} . Возбужденное состояние RE^{3+*} возникает вследствие передачи ему энергии рекомбинации. Высвечивание здесь происходит с характерным для RE^{3+} спектром ($RE^{3+*} \rightarrow RE^{3+} + h\nu$). Следует отметить, что в литературе [17] встречаются попытки объяснить механизмы ТСЛ перезарядкой РЗЭ даже в случае исходного состояния RE^{3+} , но это не подтверждено экспериментально.

Для проведенного исследования важен тот факт, что легированный РЗЭ MgB_4O_7 , в котором исходным состоянием РЗЭ оказывается RE^{3+} , демонстрирует интенсивный сигнал ОСЛ [18, 19]. Действительно, если свет может «снимать» с ловушек дырки и не затрагивать захваченных электронов, то должна наблюдаться ОСЛ. Следовательно, поиск материалов на основе MgB_4O_7 , позволяющих эффективно считывать с них дозовую информацию с помощью ОСЛ, необходимо начать с определения зарядового состояния входящих в MgB_4O_7 РЗЭ.

Следует отметить работы, посвященные зарядовым состояниям РЗЭ в различных матрицах [20–24]. Основная идея довольно проста: если основное состояние примесного RE^{3+} оказывается выше уровня Ферми в материале, то оно будет стабильно, если ниже — то вместо RE^{3+} будет наблюдаться RE^{2+} . При этом положение уровней РЗЭ относительно друг друга как в состояниях RE^{3+} , так и в состояниях RE^{2+} может быть рассчитано с достаточной точностью, что позволяет определить положение уровней и зарядовые состояния РЗЭ, если известно положение уровней

хотя бы для одного состояния. Для определения положения уровня RE^{2+} достаточно знать положение максимума полосы возбуждения ФЛ с переносом заряда для соответствующего ему RE^{3+} . Такая методика описана в [24], где в качестве реперного РЗЭ использован европий. Данных по европию в состоянии $3+$ в литературе нет, но есть указания на то, что в боратах он присутствует скорее в состоянии Eu^{2+} . В связи с этим здесь в качестве отправного элемента выбран тербий, спектр возбуждения которого в MgB_4O_7 приведен в [19]. Максимум полосы с переносом заряда оказался при 230,5 нм, что соответствует $E_{CT}(Tb^{3+}) = 5,38$ эВ. Привязка расчетов в [24] сделана к европию, поэтому $E_{CT}(Eu^{3+}) = 2,17$ эВ. Затем можно пересчитать положения уровней для всех РЗЭ, входящих в MgB_4O_7 . Результаты приведены в таблице. Эти положения необходимо сравнить с положением уровня Ферми (E_F) MgB_4O_7 . Его располагают в середине запрещенной зоны (при условии, что легирование не влияет на его положение). Тогда «уровень отсечки» состояний $3+$ от $2+$ должен пролетать примерно на границе 5 эВ.

Значения энергии максимума полосы возбуждения люминесценции с переносом заряда для некоторых ионов РЗЭ в матрице тетрабората магния

n	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
Ln	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
$n, 3 + E_{CT}$	-	7,78	6,30	5,04	4,60	4,51	3,42	2,17	6,73	5,38	4,44	4,57	4,75	3,89	2,603

Согласно данным таблицы, гарантированно в состоянии $3+$ могут быть только три элемента: Ce, Pr и Tb. Диспрозий Dy оказывается очень близок к границе, но результаты показывают, что он находится в состоянии $2+$. Таким образом, это позволяет исключить остальные РЗЭ.

Проведено предварительное исследование образца $MgB_4O_7:Tb,Li$. Представленный спектр ФЛ (рис. 4) получен при возбуждении в полосе с переносом заряда. Он соответствует известному спектру свечения тербия в зарядовом состоянии $3+$ [15]. На КТВ образца $MgB_4O_7:Tb,Li$ доминирует высокотемпературный пик с максимумом около 565 К. Дальнейшая работа будет направлена на оптимизацию образцов $MgB_4O_7:Tb,Li$ для получения КТВ с пиками при температуре 440...500 К, что с высо-

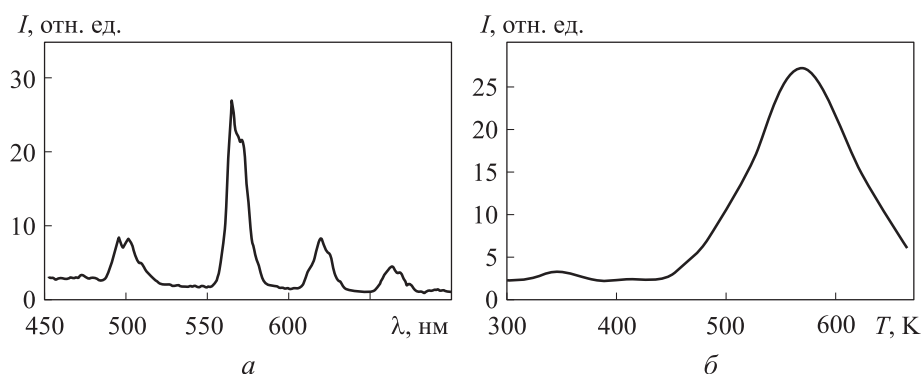


Рис. 4. Спектр ФЛ (а) и КТВ (б) для образца $MgB_4O_7:Tb,Li$

кой долей вероятности позволит получить материалы, пригодные для ОСЛ-дозиметрии.

Заключение. Проведено изучение люминесцентных свойств тетрабората магния, легированного диспрозием и натрием или тербием и литием. Для образцов $MgB_4O_7:Dy,Na$ зарегистрирован характерный для этого материала сигнал ТСЛ, сигнал ОСЛ, как и ФЛ, отсутствует. Сделан вывод о том, что диспрозий входит в матрицу тетрабората в состоянии 2+, что не позволяет считывать дозовую информацию методом ОСЛ ввиду «снятия» светом с ловушек электронов вместо требуемых дырок. Предполагается, что ОСЛ возможна только для РЗЭ, входящих в MgB_4O_7 в зарядовом состоянии 3+. На основе анализа литературных данных и результатов выполненных расчетов показано, что такими элементами могут быть только Се, Рг и Ть. При этом по тербию получены экспериментальные данные, подтверждающие его вхождение в матрицу тетрабората магния в состоянии 3+. Дальнейшее совершенствование этого материала позволит использовать его для изготовления запоминающих экранов, считываемых методом ОСЛ. Такие экраны могут применяться при измерении распределения дозы радиации в тканеэквивалентных фантомах при планировании процедур лучевой терапии.

Благодарности

Авторы выражают благодарность канд. физ.-мат. наук Б.И. Заднепровскому (МФТИ) за синтез образцов.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Hu M., Jiang L., Cui X., et al. Proton beam therapy for cancer in the era of precision medicine. *J. Hematol. Oncol.*, 2018, vol. 11, no. 1, art. 136.
DOI: <https://doi.org/10.1186/s13045-018-0683-4>

- [2] Мамаева С.Н., Иванова С.М., Шутова В.В. и др. Исследование изменений состояния эритроцитов и плазмы крови обезьян при воздействии ионизирующего излучения. *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. Естественные науки*, 2022, № 5 (104), с. 86–104. DOI: <https://doi.org/10.18698/1812-3368-2022-5-86-104>
- [3] Гержик А.А., Разницына И.А. Экспериментальное обоснование ряда требований к аппаратным и методическим средствам неконтактной фотоплетизмографии на основе анализа видеоизображений. *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. Приборостроение*, 2021, № 4 (137), с. 122–138. DOI: <https://doi.org/10.18698/0236-3933-2021-4-122-138>
- [4] Leblans P., Vandembroucke D., Willems P. Storage phosphors for medical imaging. *Materials*, 2011, vol. 4, iss. 6, pp. 1034–1086. DOI: <https://doi.org/10.3390/ma4061034>
- [5] Sađel M., Bilski P., Swakoń J., et al. Comparative investigations of the relative thermoluminescent efficiency of LiF detectors to protons at different proton therapy facilities. *Radiat. Meas.*, 2015, vol. 82, pp. 8–13. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.07.009>
- [6] Selvam T.P., Keshavkumar B. Monte Carlo investigation of energy response of various detector materials ^{125}I and ^{169}Yb brachytherapy dosimetry. *J. Appl. Clin. Medical Phys.*, 2010, vol. 11, iss. 4, pp. 70–82. DOI: <https://doi.org/10.1120/jacmp.v11i4.3282>
- [7] Yukihara E.G., Doull B.A., Gustafson T., et al. Optically stimulated luminescence of $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Ce},\text{Li}$ for gamma and neutron dosimetry. *J. Lumin.*, 2017, vol. 183, pp. 525–532. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2016.12.001>
- [8] Kitis G., Polymeris G.S., Sfampa I.K., et al. Prompt isothermal decay of thermoluminescence in $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy}$, Na and $\text{LiB}_4\text{O}_7:\text{Cu}$, In dosimeters. *Radiat. Meas.*, 2016, vol. 84, pp. 15–25. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.11.002>
- [9] Дайбаре Д.С., Амброзевич С.А., Перепелица А.С. и др. Спектральные и кинетические свойства квантовых точек сульфида серебра во внешнем электрическом поле. *Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики*, 2022, т. 22, № 6, с. 1098–1103. DOI: <https://doi.org/10.17586/2226-1494-2022-22-6-1098-1103>
- [10] 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. EDN: HSJNPH
- [11] Furetta C., Prokic M., Salamon R., et al. Dosimetric characterisation of a new production of $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy},\text{Na}$ thermoluminescent material. *Appl. Radiat. Isot.*, 2000, vol. 52, iss. 2, pp. 243–250. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(99\)00124-4](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(99)00124-4)
- [12] Danilkin M., Jaek I., Kerikmäe M., et al. Storage mechanism and OSL-readout possibility of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ (TLD-800). *Radiat. Meas.*, 2010, vol. 45, iss. 3-6, pp. 562–565. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.01.045>
- [13] Porwal N.K., Kadam R.M., Seshagiri T.K., 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.*, 2005, vol. 40, iss. 1, pp. 69–75. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2005.04.007>

[14] Kumar M.V., Jamalaiah B.C., Gopal K.R., et al. Optical absorption and fluorescence studies of Dy³⁺-doped lead telluroborate glasses. *J. Lumin.*, 2012, vol. 132, iss. 1, pp. 86–90. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2011.07.021>

[15] Kawashima Y.S., Gugliotti C.F., Yee M., et al. Thermoluminescence features of MgB₄O₇:Tb phosphor. *Radiat. Phys. Chem.*, 2014, vol. 95, pp. 91–93.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2012.12.033>

[16] Gustafson T.D., Milliken E.D., Jacobsohn L.G., et al. Progress and challenges towards the development of a new optically stimulated luminescence (OSL) material based on MgB₄O₇:Ce,Li. *J. Lumin.*, 2019, vol. 212, pp. 242–249.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2019.04.028>

[17] Yukihara E.G., Milliken E.D., Doull B.A. Thermally stimulated and recombination processes in MgB₄O₇ investigated by systematic lanthanide doping. *J. Lumin.*, 2014, vol. 154, pp. 251–259. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2014.04.038>

[18] Souza L.F., Novais A.L., Antonio P.L., et al. Luminescent properties of MgB₄O₇:Ce,Li to be applied in radiation dosimetry. *Radiat. Phys. Chem.*, 2019, vol. 164, art. 108353.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108353>

[19] Palan C.B., Omanwar S.K. Synthesis and preliminary TL/OSL properties of MgB₄O₇:Tb³⁺ phosphor for radiation dosimetry. *NC-RISE 17*, 2017, vol. 5, no. 9, pp. 53–54.

[20] Dorenbos P. The 5d level positions of the trivalent lanthanides in inorganic compounds. *J. Lumin.*, 2000, vol. 91, iss. 3-4, pp. 155–176.

DOI: [https://doi.org/10.1016/S0022-2313\(00\)00229-5](https://doi.org/10.1016/S0022-2313(00)00229-5)

[21] Dorenbos P. Locating lanthanide impurity levels in the forbidden band of host crystals. *J. Lumin.*, 2004, vol. 108, iss. 1-4, pp. 301–305.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2004.01.064>

[22] Dorenbos P. Modeling the chemical shift of lanthanide 4f electron binding energies. *Phys. Rev. B*, 2012, vol. 85, iss. 16, art. 165107.

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.165107>

[23] Dorenbos P. Valence stability of lanthanide ions in inorganic compounds. *Chem. Mater.*, 2005, vol. 17, iss. 25, pp. 6452–6456. DOI: <https://doi.org/10.1021/cm051456o>

[24] Dorenbos P. A review on how lanthanide impurity levels change with chemistry and structure of inorganic compounds. *J. Solid State Sci. Technol.*, 2012, vol. 2, no. 2, art. R3001. DOI: <https://doi.org/10.1149/2.001302jss>

Захарчук Иван Александрович — ассистент кафедры «Физика» МГТУ им. Н.Э. Баумана (Российская Федерация, 105005, Москва, 2-я Бауманская ул., д. 5, стр. 1); младший научный сотрудник отдела люминесценции им. С.И. Вавилова ФИАН (Российская Федерация, 119991, Москва, Ленинский пр-т, д. 53).

Амброзевич Сергей Александрович — канд. физ.-мат. наук, старший научный сотрудник отдела люминесценции им. С.И. Вавилова ФИАН (Российская Федерация, 119991, Москва, Ленинский пр-т, д. 53).

Селюков Александр Сергеевич — канд. физ.-мат. наук, доцент кафедры «Физика» МГТУ им. Н.Э. Баумана (Российская Федерация, 105005, Москва, 2-я Бауманская ул., д. 5, стр. 1); младший научный сотрудник отдела люминесценции им. С.И. Вавилова ФИАН (Российская Федерация, 119991, Москва, Ленинский пр-т, д. 53); заведующий отделом научной информации по физике ВИНТИ РАН (Российская Федерация, 125190, Москва, ул. Усиевича, д. 20).

Данилкин Михаил Игоревич — канд. физ.-мат. наук, старший научный сотрудник отдела люминесценции им. С.И. Вавилова ФИАН (Российская Федерация, 119991, Москва, Ленинский пр-т, д. 53); старший научный сотрудник лаборатории технологий 3D-печати функциональных микроструктур МФТИ (Российская Федерация, 141701, Московская обл., Долгопрудный, Институтский переулок, д. 9).

Осадченко Анна Владимировна — младший научный сотрудник отдела люминесценции им. С.И. Вавилова ФИАН (Российская Федерация, 119991, Москва, Ленинский пр-т, д. 53); научный редактор отдела научной информации по физике ВИНТИ РАН (Российская Федерация, 125190, Москва, ул. Усиевича, д. 20).

Дайбаге Даниил Саюзович — младший научный сотрудник отдела люминесценции им. С.И. Вавилова ФИАН (Российская Федерация, 119991, Москва, Ленинский пр-т, д. 53).

Просьба ссылаться на эту статью следующим образом:

Захарчук И.А., Амброзевич С.А., Селюков А.С. и др. Детекторы на основе тетрабората магния для дозиметрии в тканеэквивалентных фантомах. *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. Естественные науки*, 2024, № 4 (115), с. 47–62.
EDN: XUHFMZM

**MAGNESIUM-TETRABORATE BASED DETECTORS
IN THE TISSUE-EQUIVALENT PHANTOMS DOSIMETRY**

I.A. Zakharchuk^{1,2}

zakharchuk@bmstu.ru

S.A. Ambrozevich²

ambrozevichsa@lebedev.ru

A.S. Selyukov^{1,2,3}

selyukov@bmstu.ru

M.I. Danilkin^{2,4}

mihhail.danilkin@ya.ru

A.V. Osadchenko^{2,3}

anna.vl.osadchenko@gmail.com

D.S. Daibagya²

daibagya@mail.ru

¹ Bauman Moscow State Technical University, Moscow, Russian Federation

² Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences,
Moscow, Russian Federation

³ All-Russian Institute of Scientific and Technical Information,
Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation

⁴ Moscow Institute of Physics and Technology, Dolgoprudnyy,
Moscow Region, Russian Federation

Abstract

The paper examines luminescent properties of the magnesium tetraborate doped with dysprosium and sodium. The samples were synthesized by the two-stage impurity introduction method. The $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Na}$ dose response was obtained for irradiation doses of up to 8 Gy. The dose response linearity for the $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Na}$ was demonstrated. Spectral composition of the $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Na}$ sample thermally stimulated luminescence corresponded to the Dy^{3+} emission spectrum. However, photoluminescence upon excitation at the wavelengths characteristic for Dy^{3+} , as well as the Dy^{3+} optically stimulated luminescence, were not registered. Optical thermoluminescence curve erasure effect was detected and analyzed using various light sources for this material. It was shown that light similarly affected both the working and the high-temperature peaks of the thermally stimulated luminescence. Theoretical models of luminescence for the tetraborate-based materials were analyzed. Positions of the rare earth elements energy levels in the tetraborate matrix were found based on the known model. Suitable rare earth elements were identified for using as the impurities to create materials with the optical dose data reading. The $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Tb,Li}$ was synthesized by a similar method. The Tb characteristic photoluminescence in the 3+ charge state was obtained for this sample. High-temperature peak at about 300 °C dominated on the thermal luminescence curve. The luminescence spectral composition was also corresponding to Tb^{3+}

Keywords

Magnesium tetraborate, thermally stimulated luminescence, optically stimulated luminescence, tissue-equivalent materials

Received 26.10.2023

Accepted 12.12.2023

© Author(s), 2024

The work was supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation, scientific project 15.SIN.21.0008 (agreement no. 075-11-2021-086)

REFERENCES

- [1] Hu M., Jiang L., Cui X., et al. Proton beam therapy for cancer in the era of precision medicine. *J. Hematol. Oncol.*, 2018, vol. 11, no. 1, art. 136. DOI: <https://doi.org/10.1186/s13045-018-0683-4>
- [2] Mamaeva S.N., Ivanova S.M., Shutova V.V., et al. Study of alterations in the erythrocytes and plasma state in monkeys' blood exposed to ionizing radiation. *Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Natural Sciences*, 2022, no. 5 (104), pp. 86–104 (in Russ.). DOI: <https://doi.org/10.18698/1812-3368-2022-5-86-104>

- [3] Gerzhik A.A., Raznitsyna I.A. Experimental substantiation of a number of requirements for hardware and methodology of non-contact photoplethysmography based on video image analysis. *Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Instrument Engineering*, 2021, no. 4 (137), pp. 122–138 (in Russ.). DOI: <https://doi.org/10.18698/0236-3933-2021-4-122-138>
- [4] Leblans P., Vandenbroucke D., Willems P. Storage phosphors for medical imaging. *Materials*, 2011, vol. 4, iss. 6, pp. 1034–1086. DOI: <https://doi.org/10.3390/ma4061034>
- [5] Sađel M., Bilski P., Swakoń J., et al. Comparative investigations of the relative thermoluminescent efficiency of LiF detectors to protons at different proton therapy facilities. *Radiat. Meas.*, 2015, vol. 82, pp. 8–13. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.07.009>
- [6] Selvam T.P., Keshavkumar B. Monte Carlo investigation of energy response of various detector materials ^{125}I and ^{169}Yb brachytherapy dosimetry. *J. Appl. Clin. Medical Phys.*, 2010, vol. 11, iss. 4, pp. 70–82. DOI: <https://doi.org/10.1120/jacmp.v11i4.3282>
- [7] Yukihara E.G., Doull B.A., Gustafson T., et al. Optically stimulated luminescence of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Ce,Li}$ for gamma and neutron dosimetry. *J. Lumin.*, 2017, vol. 183, pp. 525–532. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2016.12.001>
- [8] Kitis G., Polymeris G.S., Sfampa I.K., et al. Prompt isothermal decay of thermoluminescence in $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy, Na}$ and $\text{LiB}_4\text{O}_7\text{:Cu, In}$ dosimeters. *Radiat. Meas.*, 2016, vol. 84, pp. 15–25. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.11.002>
- [9] Daibagya D.S., Ambrozevich S.A., Perepelitsa A.S., et al. Spectral and kinetic properties of silver sulfide quantum dots in an external electric field. *Nauchno-tehnicheskiiy vestnik informatsionnyh tekhnologiy, mekhaniki i optiki* [Scientific and Technical Journal of Information Technologies, Mechanics and Optics], 2022, vol. 22, no. 6, pp. 1098–1103 (in Russ.). DOI: <https://doi.org/10.17586/2226-1494-2022-22-6-1098-1103>
- [10] Afanas'ev B.N., Bychkov V.B., Lartsev V.D., et al. Parameters of the electron beams generated by the RADAN-220 and RADAN-EKSPERT accelerators. *Instrum. Exp. Tech.*, 2005, vol. 48, no. 5, pp. 641–645. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10786-005-0114-y>
- [11] Furetta C., Prokic M., Salamon R., et al. Dosimetric characterisation of a new production of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ thermoluminescent material. *Appl. Radiat. Isot.*, 2000, vol. 52, no. 2, pp. 243–250. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(99\)00124-4](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(99)00124-4)
- [12] Danilkin M., Jaek I., Kerikmäe M., et al. Storage mechanism and OSL-readout possibility of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Mn}$ (TLD-800). *Radiat. Meas.*, 2010, vol. 45, iss. 3-6, pp. 562–565. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.01.045>
- [13] Porwal N.K., Kadam R.M., Seshagiri T.K., 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.*, 2005, vol. 40, iss. 1, pp. 69–75. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2005.04.007>
- [14] Kumar M.V., Jamalaiah B.C., Gopal K.R., et al. Optical absorption and fluorescence studies of Dy^{3+} -doped lead telluroborate glasses. *J. Lumin.*, 2012, vol. 132, iss. 1, pp. 86–90. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2011.07.021>

- [15] Kawashima Y.S., Gugliotti C.F., Yee M., et al. Thermoluminescence features of $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Tb}$ phosphor. *Radiat. Phys. Chem.*, 2014, vol. 95, pp. 91–93.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2012.12.033>
- [16] Gustafson T.D., Milliken E.D., Jacobsohn L.G., et al. Progress and challenges towards the development of a new optically stimulated luminescence (OSL) material based on $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Ce,Li}$. *J. Lumin.*, 2019, vol. 212, pp. 242–249.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2019.04.028>
- [17] Yukihara E.G., Milliken E.D., Doull B.A. Thermally stimulated and recombination processes in MgB_4O_7 investigated by systematic lanthanide doping. *J. Lumin.*, 2014, vol. 154, pp. 251–259. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2014.04.038>
- [18] Souza L.F., Novais A.L., Antonio P.L., et al. Luminescent properties of $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Ce,Li}$ to be applied in radiation dosimetry. *Radiat. Phys. Chem.*, 2019, vol. 164, art. 108353. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108353>
- [19] Palan C.B., Omanwar S.K. Synthesis and preliminary TL/OSL properties of $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Tb}^{3+}$ phosphor for radiation dosimetry. *NC-RISE 17*, 2017, vol. 5, no. 9, pp. 53–54.
- [20] Dorenbo P. The 5d level positions of the trivalent lanthanides in inorganic compounds. *J. Lumin.*, 2000, vol. 91, iss. 3-4, pp. 155–176.
DOI: [https://doi.org/10.1016/S0022-2313\(00\)00229-5](https://doi.org/10.1016/S0022-2313(00)00229-5)
- [21] Dorenbo P. Locating lanthanide impurity levels in the forbidden band of host crystals. *J. Lumin.*, 2004, vol. 108, iss. 1-4, pp. 301–305.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2004.01.064>
- [22] Dorenbo P. Modeling the chemical shift of lanthanide 4f electron binding energies. *Phys. Rev. B*, 2012, vol. 85, iss. 16, art. 165107.
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.165107>
- [23] Dorenbo P. Valence stability of lanthanide ions in inorganic compounds. *Chem. Mater.*, 2005, vol. 17, iss. 25, pp. 6452–6456. DOI: <https://doi.org/10.1021/cm051456o>
- [24] Dorenbo P. A review on how lanthanide impurity levels change with chemistry and structure of inorganic compounds. *J. Solid State Sci. Technol.*, 2012, vol. 2, no. 2, art. R3001. DOI: <https://doi.org/10.1149/2.001302jss>

Zakharchuk I.A. — Assist. Professor, Department of Physics, Bauman Moscow State Technical University (2-ya Baumanskaya ul. 5, str. 1, Moscow, 105005 Russian Federation); Junior Researcher, Vavilov Luminescence Department, Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences (Leninskiy prospekt 53, Moscow, 119991 Russian Federation).

Ambrozevich S.A. — Cand. Sc. (Phys.-Math.), Senior Researcher, Vavilov Luminescence Department, Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences (Leninskiy prospekt 53, Moscow, 119991 Russian Federation).

Selyukov A.S. — Cand. Sc. (Phys.-Math.), Assoc. Professor, Department of Physics, Bauman Moscow State Technical University (2-ya Baumanskaya ul. 5, str. 1, Moscow, 105005 Russian Federation); Junior Researcher, Vavilov Luminescence Department, Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences (Leninskiy prospekt 53, Moscow, 119991 Russian Federation); Head of the Department of Scientific Information in Physics, All-Russian Institute for Scientific and Technical Information, Russian Academy of Sciences (Usievicha ul. 20, Moscow, 125190 Russian Federation).

Danilkin M.I. — Cand. Sc. (Phys.-Math.), Senior Researcher, Vavilov Luminescence Department, Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences (Leninskiy prospekt 53, Moscow, 119991 Russian Federation); Senior Researcher, Laboratory for Technologies of 3D Printing of Functional Microstructures, Moscow Institute of Physics and Technology (Institutskiy pereulok 9, Dolgoprudnyy, Moscow Region, 141701 Russian Federation).

Osadchenko A.V. — Junior Researcher, Vavilov Luminescence Department, Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences (Leninskiy prospekt 53, Moscow, 119991 Russian Federation); Scientific Editor, Department of Scientific Information in Physics, All-Russian Institute for Scientific and Technical Information, Russian Academy of Sciences (Usievicha ul. 20, Moscow, 125190 Russian Federation).

Daibagya D.S. — Junior Researcher, Vavilov Luminescence Department, Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences (Leninskiy prospekt 53, Moscow, 119991 Russian Federation).

Please cite this article in English as:

Zakharchuk I.A., Ambrozevich S.A., Selyukov A.S., et al. Magnesium-tetraborate based detectors in the tissue-equivalent phantoms dosimetry. *Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Natural Sciences*, 2024, no. 4 (115), pp. 47–62 (in Russ.). EDN: XUHFZM