

05

Кинетические параметры термолюминесценции и основные дозиметрические характеристики керамик оксида магния с примесью церия

© Т.В. Штанг¹, С.В. Никифоров¹, В.М. Лисицын², М.Г. Голковский³

¹ Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

² Томский политехнический университет, Томск, Россия

³ Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия

E-mail: t.v.shtang@urfu.ru

Поступило в Редакцию 12 марта 2026 г.

В окончательной редакции 20 мая 2026 г.

Принято к публикации 21 мая 2026 г.

Исследованы кинетические параметры термолюминесценции (ТЛ), дозовые характеристики и фединг керамик оксида магния с примесью церия, синтезированных в потоке быстрых электронов. При анализе кривых ТЛ установлено, что в легированных церием образцах формируются новые центры захвата, обуславливающие пики при 407 и 445 К. Кинетические параметры данных центров рассчитаны методом разложения кривых ТЛ на элементарные компоненты, описываемые кинетикой общего порядка. Показано, что преимуществом легированных церием керамик по сравнению с номинально чистыми является значительно меньшая величина ТЛ-фединга, что связано с влиянием ловушек большой энергетической глубины, образующихся при введении в матрицу ионов церия.

Ключевые слова: оксид магния, ионы церия, термолюминесценция, дозовые характеристики, фединг.

DOI: 10.61011/PJTF.2026.16.63431.20679

Высокоинтенсивные ионизирующие излучения широко применяются в технологиях производства электронных приборов, стерилизации медицинских инструментов и пищевых продуктов, модификации материалов и научных исследованиях [1]. В связи с этим актуальной является задача разработки детекторов указанных излучений, способных регистрировать дозы в диапазоне 1 кГу–100 МГу. Для ее решения перспективным является метод термолюминесцентной дозиметрии с использованием в качестве детекторов радиационно стойких материалов [2]. К таким материалам относится оксид магния (MgO), характеризующийся широкой запрещенной зоной (7.8 eV) и высокой термической и химической стабильностью (температура плавления 2800 °C) [3].

В работе [4] номинально чистые керамики MgO были синтезированы радиационным методом путем прямого воздействия потока электронов на шихту за время, меньшее 1 с. К достоинствам метода можно отнести высокую производительность (около 2 г/с в лабораторных условиях) [5]. Установлено, что полученные таким способом керамики оксида магния могут быть использованы для регистрации высоких доз импульсных электронных пучков с энергией 130 keV [4]. Указанные пучки широко применяются для поверхностной стерилизации [6], а также в научных исследованиях для возбуждения импульсной катодолюминесценции [7]. Показано, что синтезированные в работе [4] керамики MgO характеризуются линейной дозовой зависимостью пика термолюминесценции (ТЛ) при 370 К в диапазоне доз 1.5–30 кГу.

Известно, что люминесцентные свойства MgO могут существенным образом изменяться при его легировании различными примесями, формирующими новые центры захвата и рекомбинации [8–14]. Одной из таких примесей является примесь ионов церия (Ce^{3+}). Люминесцентные свойства фосфоров, содержащих ионы Ce^{3+} в своей матрице, интенсивно изучаются благодаря большим коэффициентам их оптического поглощения и малому времени затухания свечения, обусловленного $f-d$ -переходом [11]. Исследованию особенностей ТЛ-образцов MgO:Ce, облученных различными видами радиации, посвящен ряд работ [8–11]. При этом авторы при возбуждении ТЛ ограничивались диапазоном доз до 1 кГу. Термолюминесцентные и дозиметрические свойства керамик оксида магния, легированных церием и синтезированных в потоке быстрых электронов, до настоящего времени не исследовались.

Целью настоящей работы является сравнительный анализ кинетических параметров ТЛ и основных дозиметрических характеристик керамик номинально чистого и легированного церием оксида магния, синтезированного в потоке высокоэнергетических электронов.

Образцы были изготовлены путем воздействия потока электронов с энергией 1.4 MeV и плотностью мощности 23 kW/cm², генерируемых ускорителем ЭЛВ-6, на порошок оксида магния с размером частиц 10 μm. Облучение проводилось в ИЯФ СО РАН (Новосибирск, Россия). Для получения легированных образцов в исходный порошок MgO добавлялся активатор в виде Ce₂O₃ со средним размером зерна 9 μm. Порошки были

изготовлены фирмой „Oshv“ (Москва, Россия). Порошки MgO и Ce₂O₃ смешивались в специальном устройстве в течение 3 h. Масса порошка Ce₂O₃ выбиралась таким образом, чтобы обеспечить концентрацию оксида церия, равную 1% от общей массы исходного состава.

Шихта насыпалась в медные тигли размером 120 × 60 × 40 mm, насыпная плотность шихты составляла 0.9–1 g/cm³, толщина слоя — 7 mm. Тигель перемещался со скоростью 1 cm/s относительно плоскости сканирующего с частотой 50 Hz пучка электронов с сечением 1 cm². Каждый участок поверхности подвергался облучению в течение 1 s. Полное время сканирования 10 s. В работе [4] было установлено, что электроны с энергией 1.4 MeV проникают в шихту MgO на глубину 5.7 mm. Максимум плотности потерь энергии электронами приходится на глубину 2.5 mm [4]. По нашим оценкам глубина спекания керамик не превышала 4 mm.

Используемая в работе энергия электронного пучка (1.4 MeV) обеспечивает необходимую глубину проникновения электронов в материал шихты. Кроме того, она существенно выше пороговой энергии образования радиационных дефектов в MgO, которая составляет около 330 keV [15]. Известно, что при электронно-лучевом синтезе наряду с тепловыми большую роль играют ионизационные процессы, вызывающие распад электронных возбуждений на первичные продукты радиолиза и протекание реакций между ними [5]. Оптимальное значение плотности мощности электронного пучка для получения керамик было установлено экспериментально, чтобы обеспечить необходимую глубину спекания порошков. Для исследуемого нами материала оптимальная плотность мощности электронного пучка с энергией 1.4 MeV составляет 23 kW/cm² [16].

Используемые для измерения ТЛ образцы керамик имели неправильную форму и были получены путем раскола больших кусков керамики до частиц с максимальным размером в диаметре не более 3 mm. По данным рентгенофлуоресцентного анализа, проведенного с помощью спектрометра ARL QUANT'X, массовая доля церия в легированных образцах составляла 0.975%. В номинально чистых образцах MgO содержание примесей не превышало 0.1%.

Для возбуждения ТЛ образцы облучались при комнатной температуре импульсным электронным пучком (60 A/cm², 2 ns, 1.5 kGy для одного импульса) ускорителя „РАДАН ЭКСПЕРТ“ с энергией электронов 130 keV. Указанная энергия существенно отличается от энергий, используемых для синтеза керамик (1.4 MeV), а также существенно ниже пороговой энергии образования радиационных дефектов в MgO [15]. Поэтому при облучении электронами с энергией 130 keV в исследуемых керамиках изменяются только зарядовое состояние существующих центров и заселенность ловушек носителями заряда. ТЛ измерялась при линейном нагреве со скоростью 2 K/s. Для регистрации

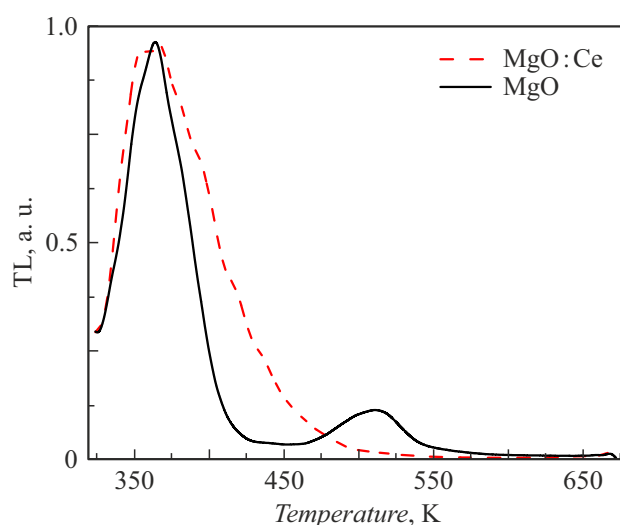


Рис. 1. Нормированные кривые ТЛ для номинально чистого MgO и MgO:Ce при дозе облучения 30 kGy. Скорость нагрева 2 K/s.

ТЛ применялся ФЭУ-142 с максимумом спектральной чувствительности 112–365 nm. Разброс значений интенсивности ТЛ различных образцов не превышал 10%, разброс величин температурного положения ТЛ-пика не превышал 2 K.

На рис. 1 представлены типичные кривые ТЛ образцов номинально чистого и легированного церием MgO при дозе облучения 30 kGy. Видно, что кривая ТЛ номинально чистых керамик MgO содержит два ТЛ-максимума: низкотемпературный большей интенсивности при 360 K и высокотемпературный меньшей интенсивности при 510 K. Введение в матрицу ионов церия приводит к изменению формы ТЛ-кривой. На ней наблюдается лишь один низкотемпературный максимум ТЛ при 360 K с увеличенным значением полуширины, а высокотемпературный пик при 510 K исчезает.

Пик ТЛ при 360 K является характерным для номинально чистого MgO и обусловлен дырочными ловушками, связанными с центрами V-типа, представляющими собой катионные вакансии с захваченными дырками [17]. Из рисунка видно, что введение примеси церия приводит к образованию новых центров захвата, ответственных за высокотемпературную часть ТЛ-максимума при 360 K. Исчезновение пика при 510 K в образцах MgO:Ce показывает, что ионы церия могут играть роль центров тушения ТЛ, что ранее наблюдалось другими авторами [10].

Для подтверждения предположения о формировании новых типов ловушек в легированных церием керамиках был проведен расчет кинетических параметров ТЛ. Расчет проводился путем разложения экспериментальных кривых ТЛ на элементарные пики, описываемые кинети-

кой общего порядка, с помощью уравнения [18]:

$$I(T) = I_m(b)^{\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \times \left[(b-1)(1-\Delta) \frac{T^2}{T_m^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) + Z_m \right]^{-\frac{b}{b-1}}, \quad (1)$$

где $\Delta = 2kT/E$, $\Delta_m = 2kT_m/E$, $Z_m = 1 + (b-1)\Delta_m$, I_m — максимальная интенсивность пика, E — энергия активации, T_m — температура максимума пика, k — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура, b — порядок кинетики.

Погрешность аппроксимации экспериментальных кривых ТЛ выражением (1) оценивалась с помощью критерия FOM (figure of merit) [19]. Расчет FOM производится по формуле

$$\text{FOM} = \frac{\sum_i |I_{\text{exp}}(T_i) - I_{\text{fit}}(T_i)|}{\sum_i I_{\text{exp}}(T_i)} \cdot 100\%, \quad (2)$$

где I_{exp} — массив экспериментальных значений интенсивности, I_{fit} — массив значений интенсивности, полученных теоретически путем разложения кривой ТЛ на элементарные пики с помощью формулы (1).

Значения частотного фактора S рассчитывались по формуле [18]:

$$S = \left(\frac{\beta E}{kT_m^2}\right) \exp\left(\frac{E}{kT_m}\right) \left[1 + (b-1) \frac{2kT_m}{E}\right], \quad (3)$$

где β — скорость нагрева.

Результаты разложения (см. рис. 2 и таблицу) показали, что пик ТЛ при 360 К для номинально чистой керамики MgO является суперпозицией вкладов трех ловушек, обуславливающих ТЛ-пики A, B и C (рис. 2, a). Уширенный сигнал ТЛ керамики MgO:Ce обусловлен опустошением пяти различных ловушек. При этом ловушки, обуславливающие ТЛ-пики A, B и C в номинально чистых образцах и пики D, E и F в легированных образцах, характеризуются практически идентичными кинетическими параметрами, что свидетельствует об их одинаковой природе. При этом значения критерия FOM не превышают 5%, что доказывает достоверность проведенного расчета. Из данных таблицы следует, что введение примеси церия приводит к появлению двух новых типов центров захвата, обуславливающих пики G и H при 407 и 445 К соответственно, которые отсутствуют в номинально чистых образцах. Следует отметить, что появление нового ТЛ-пика при 435 К в результате легирования нанокристаллов MgO ионами церия наблюдалось ранее другими авторами [11]. Однако форма ТЛ-кривой и полученные в работе [11] значения кинетических параметров ТЛ значительно отличаются от определенных в настоящей работе, что может быть обусловлено вариацией энергетической структуры ловушек в образцах, синтезированных различными методами и характеризующихся различным морфологическим состоянием и связанным с ним размером кристаллитов.

Для оценки возможности применения синтезированных в настоящей работе керамик MgO:Ce в ТЛ-дозиметрии импульсных электронных пучков нами были исследованы их дозиметрические характеристики: дозовая зависимость интенсивности максимума ТЛ и фединг, характеризующий потери дозиметрической информации при хранении образца.

На рис. 3, a представлена дозовая зависимость ТЛ образцов MgO:Ce. Для сравнения представлена также зависимость для номинально чистых образцов по данным работы [4]. Полученные зависимости были аппроксимированы линейными функциями, угол наклона которых в двойных логарифмических координатах определяет коэффициент нелинейности [20]. Из рис. 3, a видно, что коэффициенты нелинейности дозовых характеристик для образцов обоих типов составляют 0,98, что позволяет сделать вывод о близком к линейному изменению сигнала ТЛ с ростом дозы облучения в диапазоне от 1.5 до 30 kGy. Полученные результаты показывают, что

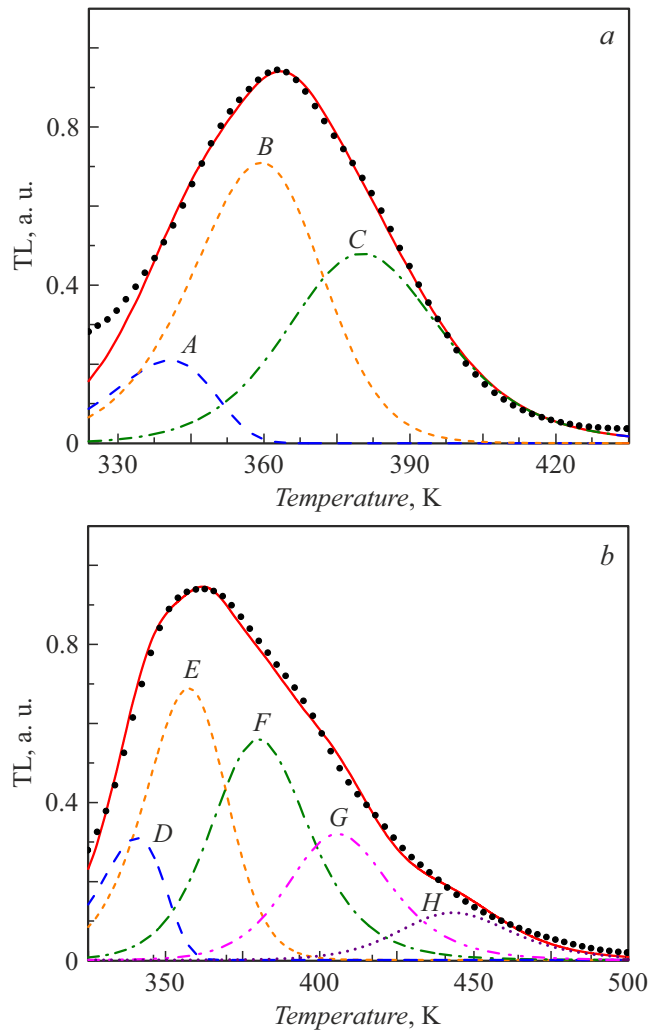


Рис. 2. Результаты разложения кривых ТЛ номинально чистого MgO (a) и MgO:Ce (b) на элементарные пики. Символы — эксперимент, линии — результат аппроксимации.

Кинетические параметры ТЛ MgO и MgO:Ce

Образец	Пик	T_m , К	E , eV	S , s ⁻¹	b	τ , s	FOM, %
MgO	A	341	0.93	$4.9 \cdot 10^{12}$	1.0	$8.6 \cdot 10^2$	3.9
	B	360	0.96	$3.1 \cdot 10^{12}$	1.4	$4.3 \cdot 10^3$	
	C	381	1.10	$5.9 \cdot 10^{13}$	2.0	$5.1 \cdot 10^4$	
MgO:Ce	D	341	0.93	$4.9 \cdot 10^{12}$	1.0	$8.6 \cdot 10^2$	3.7
	E	358	0.96	$3.7 \cdot 10^{12}$	1.4	$4.6 \cdot 10^3$	
	F	381	1.10	$5.9 \cdot 10^{13}$	2.0	$5.1 \cdot 10^4$	
	G	407	1.20	$1.2 \cdot 10^{14}$	2.0	$1.3 \cdot 10^6$	
	H	445	1.30	$7.6 \cdot 10^{13}$	2.0	$9.1 \cdot 10^7$	

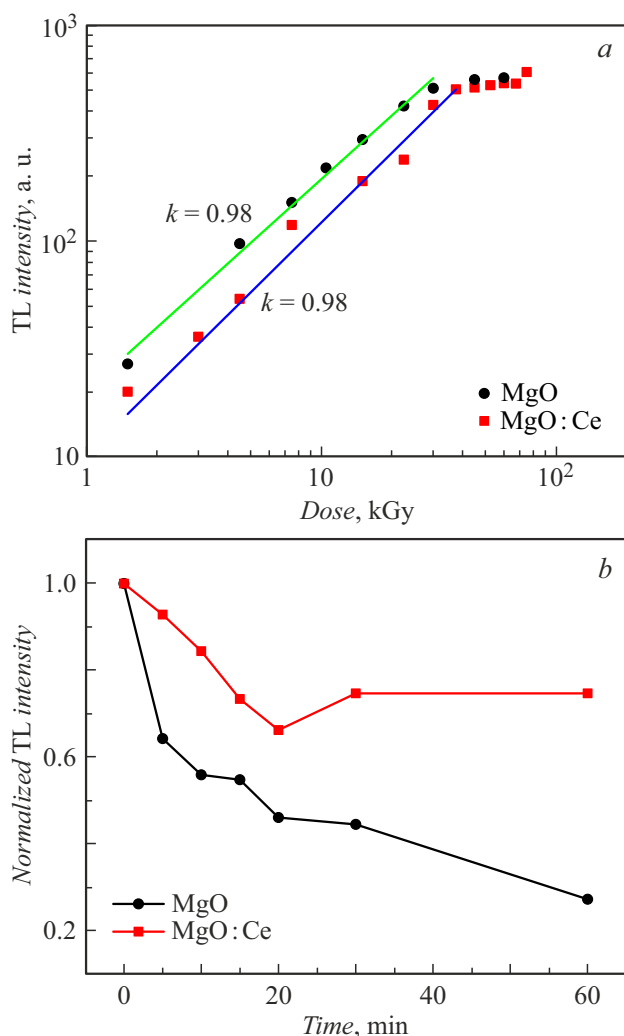


Рис. 3. Дозовые зависимости интенсивности ТЛ (а) и ТЛ-фединг (b) номинально чистого MgO и MgO:Ce.

легированные церием образцы керамики по диапазону линейности дозовой характеристики не уступают номинально чистым образцам.

Для исследования фединга облученные дозой 7.5 kGy образцы выдерживались в темноте при комнатной тем-

пературе в течение определенного промежутка времени, после чего измерялась остаточная ТЛ. На рис. 3, b представлены зависимости интенсивности максимума ТЛ от времени хранения для образцов номинально чистого MgO и MgO:Ce. Видно, что введение в оксид магния примеси церия уменьшает ТЛ-фединг материала, который для номинально чистых и легированных образцов за один час хранения составил около 80 и 30 % соответственно.

Для анализа причин указанного эффекта нами на основе данных таблицы были рассчитаны постоянные времени затухания ТЛ (τ) через больцмановский множитель согласно выражению [19]:

$$\tau = S^{-1} \exp\left(\frac{E}{kT}\right). \quad (4)$$

Полученные результаты представлены в таблице. Анализ результатов показывает, что уменьшение величины ТЛ-фединга в образцах MgO с примесью церия может быть связано с вкладом в ТЛ-сигнал высокотемпературных ловушек, обуславливающих пики G и H, отсутствующие в номинально чистых образцах. Ловушки, ответственные за указанные пики, характеризуются существенно большими значениями энергии активации по сравнению с остальными пиками, что соответствует значительно большему (на два-три порядка) величинам постоянной времени затухания τ (см. таблицу). Поэтому ТЛ этих ловушек менее существенно падает с ростом времени хранения, чем ТЛ ловушек, связанных с пиками A, B и C.

Таким образом, в настоящей работе установлено, что введение примеси церия в керамику оксида магния, синтезированные в потоке быстрых электронов, приводит к образованию новых центров захвата, ответственных за ТЛ-пики при 407 и 445 К. Кинетические параметры ТЛ данных центров рассчитаны методом разложения кривой ТЛ на элементарные пики, описываемые кинетикой общего порядка. Установлено, что легированные церием керамики MgO по диапазону линейности дозовой характеристики не уступают, а по параметрам фединга превосходят номинально чистые образцы при их использовании для дозиметрии высоких доз импульсных электронных

пучков (130 keV). При этом меньшая величина фединга в легированных образцах обусловлена влиянием на ТЛ-сигнал ловушек с большими значениями энергии активации, образующихся в MgO при введении примеси ионов церия.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (тема № FEUZ-2026-0009).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] И.М. Ободовский, *Радиационные технологии. Применение в лабораторных исследованиях, материаловедении и нанотехнологиях, промышленности* (Интеллект, Долгопрудный, 2015).
- [2] E.G. Yukihara, A.J.J. Bos, P. Bilski, S.W.S. McKeever, *Radiat. Meas.*, **158**, 106846 (2022). DOI: 10.1016/j.radmeas.2022.106846
- [3] A.I. Popov, L. Shirmane, V. Pankratov, A. Lushchik, A. Kotlov, V.E. Serga, L.D. Kulikova, G. Chikvaizde, J. Zimmermann, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **310**, 23 (2013). DOI: 10.1016/j.nimb.2013.05.017
- [4] С.В. Никифоров, В.М. Лисицын, Д.В. Ананченко, Я.П. Касаткина, М.Г. Голковский, А.В. Ищенко, *Письма в ЖТФ*, **48** (11), 8 (2022). DOI: 10.21883/PJTF.2022.11.52605.19174 [S.V. Nikiforov, V.M. Lisitsyn, D.V. Ananchenko, Y.P. Kasatkina, M.G. Golkovski, A.V. Ishchenko, *Tech. Phys. Lett.*, **48** (6), 6 (2022). DOI: 10.21883/TPL.2022.06.53454.19174].
- [5] V. Lisitsyn, D. Mussakhanov, A. Tulegenova, E. Kaneva, L. Lisitsyna, M. Golkovski, A. Zhunusbekov, *Materials*, **16**, 3158 (2023). DOI: 10.3390/ma16083158
- [6] R. Mehnert, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **105** (1-4), 348 (1995). DOI: 10.1016/0168-583X(95)00634-6
- [7] M.R. Cleland, L.A. Parks, S. Cheng, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **208**, 66 (2003). DOI: 10.1016/S0168-583X(03)00655-4
- [8] V. Guckan, S.W. Bokhari, V. Altunal, A. Ozdemir, W. Gao, Z. Yegingil, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **503**, 53 (2021). DOI: 10.1016/j.nimb.2021.07.012
- [9] L.C. Oliveira, E.G. Yukihara, O. Baffa, *J. Lumin.*, **209**, 21 (2019). DOI: 10.1016/j.jlumin.2019.01.015
- [10] P.R. Gonzalez, D. Mendoza-Anaya, O. Avila, L. Escobar-Alarcon, *Appl. Radiat. Isot.*, **226**, 112098 (2025). DOI: 10.1016/j.apradiso.2025.112098
- [11] P. Bishnoi, A. Sharma, R. Brajpuria, K.H. Chae, S.O. Won, A. Vij, *J. Photochem. Photobiol. A*, **463**, 116281 (2025). DOI: 10.1016/j.jphotochem.2025.116281
- [12] T. Kato, G. Okada, T. Yanagida, *Radiat. Meas.*, **92**, 93 (2016). DOI: 10.1016/j.radmeas.2016.07.004
- [13] K. Wu, H. Li, *Mater. Lett.*, **354**, 135255 (2024). DOI: 10.1016/j.matlet.2023.135255
- [14] R. Adibi, E. Sadeghi, M. Zahedifar, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **567**, 165828 (2025). DOI: 10.1016/j.nimb.2025.165828
- [15] A. Lushchik, T. Karner, Ch. Lushchik, K. Schwartz, F. Savikhin, E. Shablonin, A. Shugai, E. Vasil'chenko, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **286**, 200 (2012). DOI: 10.1016/j.nimb.2011.11.016
- [16] V. Lisitsyn, A. Tulegenova, M. Golkovski, E. Polisadova, L. Lisitsyna, D. Mussakhanov, G. Alpysova, *Micromachines*, **14**, 2193 (2023). DOI: 10.3390/mi14122193
- [17] A. Lushchik, E. Feldbach, S. Galajev, T. Karner, P. Liblik, C. Lushchik, A. Maaros, V. Nagirnyi, E. Vasil'chenko, *Radiat. Meas.*, **42**, 792 (2007). DOI: 10.1016/j.radmeas.2007.02.017
- [18] G. Kitis, J.M. Gomez-Rosz, J.W.N. Tuyn, *J. Phys. D*, **31**, 2636 (1998). DOI: 10.1088/0022-3727/31/19/037
- [19] R. Chen, S.W.S. McKeever, *Theory of thermoluminescence and related phenomena* (World Scientific, 1997), p. 559.
- [20] R. Chen, S.W.S. McKeever, *Radiat. Meas.*, **23** (4), 667 (1994). DOI: 10.1016/1350-4487(94)90002-7