

04,08,09

## Эффекты гамма-наведенных дефектов на активаторное свечение в сцинтилляторных кристаллах $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$

© А.Х. Исламов<sup>1</sup>, Э.М. Ибрагимова<sup>1</sup>, Х.Н. Кудратов<sup>1</sup>, Р.Р. Вильданов<sup>2</sup><sup>1</sup> Институт ядерной физики АН Узбекистана,  
Ташкент, пос. Улугбек, Узбекистан<sup>2</sup> Национальный университет Узбекистана,  
Ташкент, Узбекистан

E-mail: akhatqul@inp.uz

Поступила в Редакцию 21 апреля 2022 г.

В окончательной редакции 4 июля 2022 г.

Принята к публикации 6 июля 2022 г.

Исследованы корреляции между спектрами оптического поглощения (ОП), интегральными кривыми термовысвечивания (ТВ) (300–600 К) сцинтилляторных кристаллов  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  после облучения  $^{60}\text{Co}$  гамма-квантами с энергиями 1.17 и 1.33 MeV при мощности дозы 1.1 Gy/s в интервале доз  $70\text{--}5 \cdot 10^7$  Gy при температуре 310 К и их гамма-люминесценцией (ГЛ). Собственные дефекты: нейтральные  $\text{V}_{\text{O}_5}$ -центры с полосой поглощения 193 nm,  $\equiv\text{Si}-\text{V}_{\text{O}_5}$  — 213 nm,  $\text{Lu1}-\text{F}^+-\text{Si}$  — 238 nm,  $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$  — 263 nm, а также  $\text{Ce}^{3+}/\text{F}$  — 295 nm центры, до облучения обусловлены технологическим процессом. Облучение до дозы  $5 \cdot 10^4$  Gy уменьшает концентрацию  $\text{V}_{\text{O}_5}$ -центров, но не влияет на остальные. Однако при дозах  $> 5 \cdot 10^4$  Gy происходит рост концентрации всех остальных дефектов в структуре LSO:Ce. Восстановление полосы ОП 193 nm и уменьшение интенсивности пика ТВ 335 К с ростом времени выдержки (1,3 и 10 h) при 305 К, а также коррелированный рост ОП 238 nm и пика ТВ 540 К после облучения от 70 до  $2.3 \cdot 10^6$  Gy связаны с освобождением электронов из этих центров окраски и излучательной рекомбинацией на Ce1-центрах. Уменьшение выхода ГЛ  $\text{Ce}^{3+}$  в полосах 400 и 420 nm при дозах  $> 10^5$  Gy, возможно, связано с увеличением концентрации центров  $\equiv\text{Si}-\text{V}_{\text{O}_4}$ ,  $\text{Lu1}-\text{F}^+-\text{Si}$  и  $\text{Ce}^{3+}/\text{F}$ , конкурирующих с Ce1-центрами в захвате электронов. Так определен верхний предел стабильности  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  гамма-сцинтиллятора  $10^5$  Gy.

**Ключевые слова:**  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ , центры окраски, гамма-индуцированная люминесценция, термовысвечивание, дозовый предел сцинтиллятора.

DOI: 10.21883/FTT.2022.11.53325.357

### 1. Введение

Монокристаллы оксиортосиликата лютеция, легированные ионами церия  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  (LSO:Ce), интенсивно исследуются как очень перспективный сцинтилляционный материал, благодаря высокой плотности ( $7.4 \text{ g/cm}^3$ ), короткому времени затухания (40 ns), высокому световыходу ( $26\,000 \text{ photon/MeV}$ ), который в пять раз превышает световыход используемых сцинтилляторов  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  (BGO) без активаторов, и длине волны излучения (410 nm), подходящей для фотоэлектропреобразователей/детекторов радиации [1–3]. Кристаллы LSO:Ce были предложены для быстрого обнаружения гамма ( $\gamma$ )- или рентгеновских лучей при медицинской визуализации (позитронно-эмиссионная томография ПЭТ, рентгеновская маммография), в экспериментах по ядерной физике, физике высоких энергий (см., например, [4–8]).

В будущих экспериментах на Большом адронном коллайдере (HL-LHC) к 2030 г. требуется увеличить светимость ускорителя до  $(5\text{--}10) \cdot 10^{34} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , интегральную светимость до  $3000 \text{ fb}^{-1}$ , флюенсы заряженных адронов выше  $10^{14} \text{ p/cm}^2$  и быстрых нейтронов до  $5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ , и ионизационную дозу до 130 Mrad

( $130 \cdot 10^4 \text{ Gy}$ ) [7–10]. Для этих целей сцинтилляционные кристаллы должны иметь высокую стабильность оптической прозрачности и гамма-люминесценции при указанных уровнях радиации. Поэтому необходимо было выяснить причину радиационных изменений выхода сцинтилляционного свечения кристаллов LSO:Ce и предельную дозу его стабильности.

В работах [7,11] изучены деградация оптической прозрачности в ультрафиолетовой и видимой областях спектра LSO:Ce после облучения гамма-квантами (из источника  $^{60}\text{Co}$ ) в интервале доз  $10^2\text{--}10^6 \text{ Gy}$  [11] и после дозы облучения  $2 \cdot 10^3 \text{ Gy}$  [7]. Показана стабильность оптического пропускания в спектральной области 300–600 nm по крайней мере до доз  $10^4 \text{ Gy}$ , а после дозы  $10^6 \text{ Gy}$  обнаружено только 7%-снижение пропускания в области 420 nm и восстановление исходного состояния после термического отжига центров окраски при  $300^\circ\text{C}$  (573 K) [11]. Однако механизм восстановления до исходного состояния после отжига авторы не обсуждают. Авторы [7] наблюдают после облучения гамма-дозой  $2 \cdot 10^3 \text{ Gy}$  ряд полос оптического поглощения (ОП) 240, 306, 343, 376 и 416 nm независимо от содержания активатора Ce в LSO, которые отжигаются при температуре  $300^\circ\text{C}$  (573 K), и отмечают корреляции с термостими-

мулированной люминесценцией (ТСП) из ловушек в ортосиликате, полученной в [12,13].

В технологическом процессе выращивания кристаллов LSO:Ce методом Чохральского в инертной атмосфере образуются ростовые дефекты — например, вакансии кислорода в узлах (O5), которые не связаны с Si и имеют наименьшую энергию образования [14]. Значит, эти вакансии обусловлены разрывом связи Lu1—O5, согласно детальному структурному анализу, проведенному ранее в [15]. В кристаллах LYSO:Ce, выращенных методом зонной плавки в воздухе, было обнаружено увеличение полосы рентгенолюминесценции 420 nm и уменьшение интенсивности пиков ТСП в интервале температур 300–500 K в зависимости от роста содержания O2 (1.4, 21 и 100%) [13]. Эти данные свидетельствуют о возможности управления количеством исходных дефектов, которые могут изменить оптические свойства кристалла. С другой стороны, целенаправленное воздействие проникающей радиации на вещество является одним из важных методов проявления ростовых дефектов и контролируемого изменения их количества.

Целью настоящей работы является изучение кинетики ( $^{60}\text{Co}$ ) гамма-индуцированного накопления и отжига оптических дефектов в широком интервале гамма-доз 70– $5 \cdot 10^7$  Gy и механизмов их влияния на активаторные центры свечения в легированном LSO:Ce.

## 2. Объекты и методы исследований

Образцы монокристаллов LSO:Ce<sup>3+</sup> (концентрация Ce 0.25 at.%) были выращены методом Чохральского в атмосфере азота (N<sub>2</sub>), содержащей 3000 ppm кислорода (O<sub>2</sub>) (Scintillation Materials Research Center, Department of Materials Science and Engineering, University of Tennessee, Knoxville, USA).

Для оптических исследований были приготовлены пластинки размером 4 × 4 mm и толщиной 1 mm. Образцы заворачивали в алюминиевую фольгу для ограничения воздействия атмосферы на поверхность и облучали в Институте ядерной физики АН РУз гамма-квантами источника  $^{60}\text{Co}$  с энергиями 1.17 и 1.33 MeV при мощности дозы 1.1 Gy/s в интервале доз 70– $5 \cdot 10^7$  Gy при температуре 310 K. Для предотвращения возможного фотообесцвечивания образцов при воздействии дневного света они сохранялись в алюминиевой фольге от начала облучения до момента установки в измерительную ячейку спектрального прибора.

Спектры оптического поглощения (ОП) до и после облучения были измерены при температуре 305 K на спектрофотометрах LAMBDA-35 (PerkinElmer) и СФ-56 (ЛОМО) в спектральной области 190–1100 nm. Один и тот же образец облучали последовательно дозой 10<sup>3</sup> Gy и каждый раз регистрировали спектр ОП. Интервал времени от прекращения облучения до начала измерений спектров не превышал 3 min. Интегральная доза составила 10<sup>4</sup> Gy. Измерения спектров ОП после облучений

в интервале доз  $5 \cdot 10^4$ – $5 \cdot 10^7$  Gy произведены в трех образцах через неделю.

Спектры гамма-люминесценция (ГЛ) регистрировали при температуре 310 K с использованием дифракционного монохроматора МДР-12 с ФЭУ-39 в спектральной области 200–600 nm. Измерения спектров ГЛ до дозы  $5 \cdot 10^5$  Gy произведены на одном образце, а последующие дозы  $5 \cdot 10^4$ – $5 \cdot 10^7$  Gy измеряли на трех образцах.

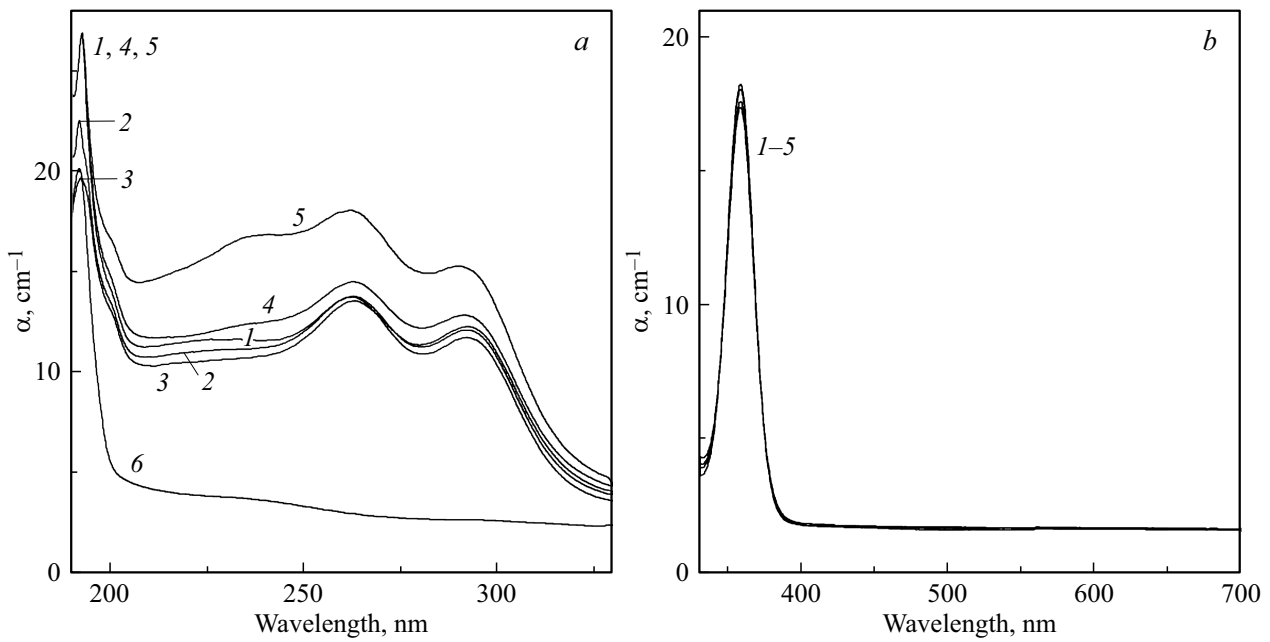
Интегральные пики термовысвечивания (ТВ) регистрировали с помощью ФЭУ-79 при постоянной скорости нагрева 0.25 K/s в интервале температур 300–600 K при контроле хромель-копелевой термопарой.

Для интерпретации эффектов проявления центров окраски и свечения проводили последовательный отжиг пиков ТВ в течение 20 min до температур, соответствующих минимумам на кривых ТВ, с последующим охлаждением в печи до 300 K, после чего измеряли спектры оптического поглощения.

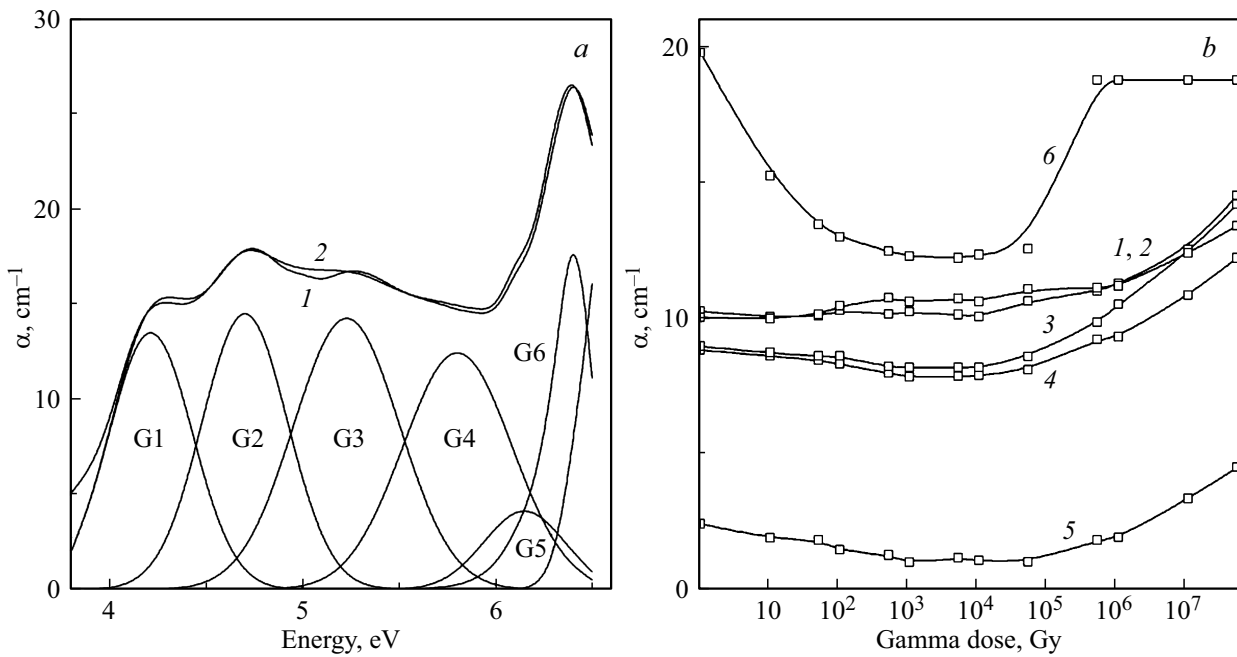
## 3. Результаты и их обсуждение

В спектрах ОП необлученных образцов LSO:Ce наблюдаются полосы поглощения в УФ-области спектра 195 и 200 nm и бесструктурная широкая полоса в области 205–250 nm, а также известные полосы 260, 295 (рис. 1, *a*, кривая 1), и 360 nm (рис. 1, *b*, кривая 1) связанные с переходами ( $4f \rightarrow 5d$ ) иона Ce<sup>3+</sup>. Измеренный спектр ОП в необлученном образце LSO:Ce аналогичен спектрам, которые ранее публиковали другие исследователи [12,16,17]. Авторы [12,16] приписывают полосы ОП 200, 220, 264, 295 и 356 nm переходам  $4f \rightarrow 5d$  в ионах Ce<sup>3+</sup>. Следует отметить, что в спектрах ОП необлученного номинально чистого образца ортосиликата иттрия YSO также наблюдается полоса ОП 195 nm и более широкая 200–250 nm (кривая 6), которая также имеется в кристалле LSO с моноклинной структурой C2/c с двумя неэквивалентными металлическими узлами (рис. 1, *a*, кривая 1). Это означает, что наблюдаемые полосы ОП в области 190–250 nm не зависят от присутствия иона активатора Ce, поэтому связаны с анионными дефектами.

После  $^{60}\text{Co}$  гамма-облучения дозами 10<sup>2</sup> и 10<sup>4</sup> Gy наблюдается более сильное уменьшение полосы ОП 195 nm по сравнению со спектральной областью 200–250 nm (рис. 1, *a*, кривые 2 и 3). После доз  $5 \cdot 10^5$  и  $5 \cdot 10^7$  Gy эта полоса увеличивается и выходит на насыщение (рис. 1, *a*, кривые 4 и 5). Кроме того, при дозе  $5 \cdot 10^5$  Gy более отчетливо выделяется полоса ОП в области 240 nm, а после доз до  $5 \cdot 10^7$  Gy быстро увеличиваются полосы ОП 240, 260 и 290 nm (рис. 1, *a*, кривые 4 и 5). При этом не наблюдается существенных изменений полосы ОП 360 nm (рис. 1, *b*, кривые 1–5). Разложение спектров ОП на рис. 2 основано на литературных данных [12,16,17], где указаны количество полос и их положение, а также из обсуждения возможной природы этих полос далее в настоящей статье. Это



**Рис. 1.** Спектры поглощения активированного кристалла LSO:Ce в *a*) УФ и *b*) видимой области: исходный (кривые 1) и после облучения дозой  $10^2$ ,  $10^4$ ,  $5 \cdot 10^5$ ,  $5 \cdot 10^7$  Gy (кривые 2–5 соответственно), и исходный кристалл YSO (кривая 6).



**Рис. 2.** *a*) Спектр поглощения кристалла LSO:Ce после облучения дозой  $5 \cdot 10^7$  Gy (кривая 1), его гауссовы составляющие (G1–G6) и их сумма (кривая 2); *b*) дозные зависимости следующих полос поглощения: 4.22, 4.7, 5.18, 5.8, 6.12 и 6.4 eV (кривые 1–6 соответственно).

необходимо для более отчетливого анализа кинетики изменения центров окраски после гамма-дозы от 70 до  $5 \cdot 10^7$  Gy.

На рис. 2, *a* представлены спектральные зависимости коэффициента поглощения  $\alpha$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) на длине волны  $\leq 330$  nm ( $\geq 3.75$  eV) после облучения дозой  $5 \cdot 10^7$  Gy (кривая 1), для которой проведено разложение на гаус-

сианы. Различаются шесть полос (G1–G6) с максимумами при 4.22 eV (293 nm), 4.7 eV (263 nm), 5.18 eV (238 nm), 5.8 eV (213 nm), 6.12 eV (202 nm) и 6.4 eV (193 nm) и FWHM (полная ширина на полувысоте) 0.51, 0.52, 0.64, 0.65, 0.5 и 0.4 eV соответственно. На основе этого нами построены дозовые зависимости максимумов полос ОП 4.22 eV (293 nm), 4.7 eV (263 nm), 5.18 eV

(238 nm), 5.8 eV (213 nm), 6.12 eV (202 nm) и 6.4 eV (193 nm) для определения кинетики их изменений. На рис. 2, *b* представлены дозовые зависимости каждой компоненты гауссиана.

Из рис. 2, *b* видно, что с ростом гамма-дозы до  $10^4$  Gy наблюдается сильное уменьшение коэффициента полосы ОП 193 nm (кривая *б*) по сравнению с полосами 6.12 eV (202 nm), 5.8 eV (213 nm) и 5.18 eV (238 nm) (кривые *5, 4, 3*). При этом коэффициенты полос 4.7 eV (263 nm) и 4.22 eV (293 nm) существенно не меняются до дозы  $5 \cdot 10^5$  Gy (кривые *2* и *1*). При дальнейшем увеличении дозы от  $10^4$  до  $5 \cdot 10^5$  Gy наблюдается рост полосы ОП 193 nm с последующим насыщением до  $5 \cdot 10^7$  Gy (кривая *б*). Также наблюдается рост коэффициентов полос 6.12 eV (202 nm) (кривая *5*), 5.8 eV (213 nm) (кривая *4*) и 5.18 eV (238 nm) (кривая *3*) с  $5 \cdot 10^4$  Gy до дозы  $5 \cdot 10^7$  Gy. Замечено увеличение коэффициентов полос ОП 4.7 eV (263 nm) и 4.22 eV (293 nm) при дозе  $> 10^6$  Gy (кривые *2* и *1*).

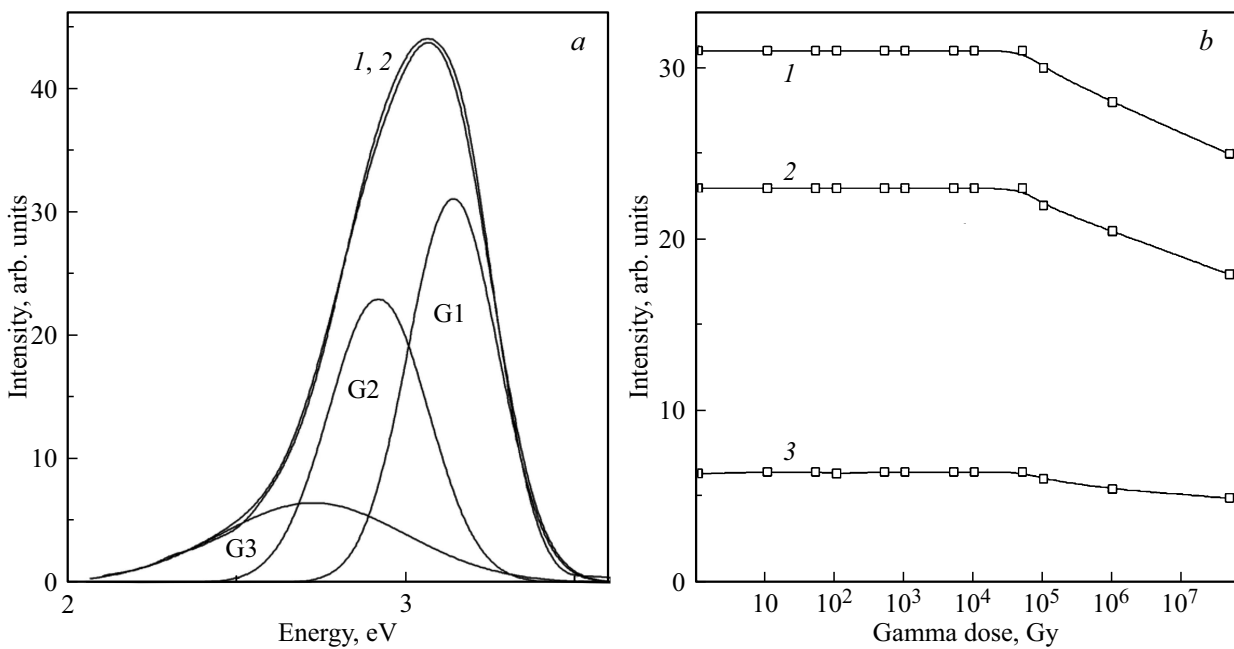
Проведенные в работах [18–20] исследования спектров отражения, возбуждения и люминесценции с использованием синхротронного излучения в интервале энергии 5–30 eV (248–41.3 nm), а также данные рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (XPS), показывают, что валентная зона состоит из смешанных состояний Lu4f–O2p, а зона проводимости образована Lu5d-состоянием. Полоса возбуждения 7.27 eV (170 nm) экситонной люминесценции обусловлена переходом O2p → Lu5d, энергия запрещенной зоны оценена как 7.52 eV (165 nm) [18]. Согласно работе [7], кислородные вакансии могут быть включены в зарядо-переносный переход  $O^{2-} - V_O$ , энергия которого должна быть больше, чем энергии оптических переходов F<sup>+</sup>- и F-центров [7]. А также с учетом детального структурного анализа, проведенного в [15], наблюдаемая полоса ОП 6.4 eV (193 nm) в исходных образцах LSO:Ce (рис. 1, *b*, кривая *1*), возможно, обусловлена вакансиями кислорода O5 в связи Lu1–O5 (Lu1–V<sub>O5</sub>), которые не связаны с Si. Наблюдаемая полоса ОП 5.8 eV (213 nm) также наблюдается в силикатных и кварцевых стеклах SiO<sub>2</sub> [21,22], которая приписывается E'-центрам (трехкоординированный кремний ≡Si). На основе этого и с учетом структурного анализа в [15] полагаем, что полоса ОП 213 nm, возможно, связана с комплексным дефектом ≡Si–V<sub>O4</sub>–Lu1. Наблюдаемая в спектре ОП полоса 5.18 eV (238 nm) (рис. 1, *a*, кривые *4* и *5*) согласно [23] связана с F<sup>+</sup>-центром (кислородная вакансия, захватившая один электрон) и, возможно, образована разрушением самой длинной связи (0.26163 nm) в [15] Lu1–O2–Si с образованием заряженной вакансии V<sub>O2</sub> — комплексного центра Lu1–F<sup>+</sup>–Si.

После высокотемпературного отжига образца LSO:Ce при 1400°C в атмосфере воздуха (14 h) авторы [24] обнаружили увеличение поглощения в области 200–290 nm относительно исходного образца за счет увеличения концентрации Ce<sup>4+</sup>-центра, даже если это не приводит к заметному уменьшению полосы поглощения

Ce<sup>3+</sup>-центров, и уменьшение полос возбуждения 265 и 297 nm люминесценции 400 и 420 nm Ce<sup>3+</sup>-центра [24]. Кроме того полосы ОП 240 и 306 nm также наблюдаются в номинально чистом образце LSO после гамма-облучения дозой  $2 \cdot 10^3$  Gy, и авторы [7] их приписывают F-центрам (кислородная вакансия, захватившая два электрона). Мы полагаем, что в спектральной области 250–300 nm на полосы поглощения 4.7 eV (263 nm) и 4.22 eV (293 nm) ионов Ce<sup>3+</sup>, возможно, накладываются полосы других Ce<sup>4+</sup>- и F-центров окраски соответственно. Образование F-центра, возможно, связано с вакансией кислорода в связи Lu–V<sub>O1</sub>–Si (Lu–F–Si ОП 306 nm [7]) или Ce–V<sub>O1</sub>–Si (Ce–F–Si ОП 4.22 eV, 293 nm). Далее эти центры окраски с характерными полосами ОП 4.7 eV (263 nm) и 4.22 eV (293 nm) упрощенно обозначаются как Ce<sup>3+</sup>/Ce<sup>4+</sup>- и Ce<sup>3+</sup>/F-центры соответственно.

Измеренные дозовые зависимости (рис. 2, *b*) коэффициентов поглощения центров окраски, связанных с вакансиями кислорода Lu1–V<sub>O5</sub> (полоса 6.4 eV, 193 nm), ≡Si–V<sub>O4</sub>–Lu1 (5.8 eV, 213 nm), Lu1–F<sup>+</sup>–Si (5.18 eV, 238 nm), активаторными центрами Ce<sup>3+</sup>/Ce<sup>4+</sup> (4.7 eV, 263 nm) и Ce<sup>3+</sup>/F (4.22 eV, 293 nm), показывают, что до дозы облучения  $5 \cdot 10^4$  Gy происходит зарядка существующих ростовых дефектов. Увеличение концентрации центров ≡Si–V<sub>O4</sub>–Lu1 (5.8 eV, 213 nm), Lu1–F<sup>+</sup>–Si (5.18 eV, 238 nm) и Ce<sup>3+</sup>/F (4.22 eV, 293 nm) при гамма-дозах  $\geq 10^5$  Gy свидетельствует о генерации свободных электронов и дополнительных вакансий V<sub>O4</sub>, V<sub>O2</sub> и V<sub>O1</sub>, которые могут стать конкурентами люминесцентному Ce<sup>3+</sup>-центру в захвате этих электронов. Чтобы выявить влияние генерированных центров на активаторное свечение Ce<sup>3+</sup> в кристалле LSO:Ce, нами регистрировались спектры ГЛ при 305 K (рис. 3, *a*). Обычно в ортосиликате LSO собственные полосы свечения 250 nm (экситоны) и 315 nm (автолокализованные дырки), согласно работам [19,6], эффективно возбуждаются при  $\leq 100$  K. Тогда их вклад при 305 K исключен.

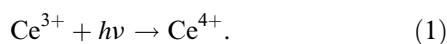
Как видно из рис. 3, *a*, в спектре ГЛ образца LSO:Ce после первых 3 min облучения наблюдается широкая полоса свечения в области энергий от 2 до 3.5 eV (кривая *1*). Известно, что в этой спектральной области при воздействии фото- [24,25,26] и рентгеновскими [27] квантами возбуждаются полосы свечения с максимумами 3.1 и 2.95 eV, связанные с Ce1-центрами; 2.75 eV (кривая *1*) — с Ce2-центрами (координированные шестью ионами кислорода), обусловленные переходом  $d \rightarrow f$  ионов Ce<sup>3+</sup>. Далее регистрировали спектры ГЛ этого же образца с интервалом времени 6 min до дозы  $10^4$  Gy. Затем регистрировали спектры ГЛ в трех образцах, предварительно облученных дозами  $5 \cdot 10^4$  и  $10^5$ ,  $10^6$  и  $5 \cdot 10^7$  Gy соответственно. С учетом количества полос свечения и их длин волн в работах [24,25–27], полученные нами спектры ГЛ после каждой дозы гамма-облучения разложены на гауссианы. При разложении на компоненты гауссиана на рис. 3, *a* отчетливо видны известные полосы свечения с максимумами



**Рис. 3.** Спектр гамма-люминесценции кристалла LSO:Ce: *a*) исходный (кривая 1), его гауссовы составляющие (G1–G3) и их сумма (кривая 2); *b*) дозовые зависимости полосы свечения: 3.1, 2.95 и 2.75 eV (кривые 1–3 соответственно).

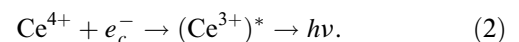
3.1 eV (399 nm) (кривая G1) и 2.95 eV (420 nm) (кривая G2), связанные с Ce1-центрами; 2.75 eV (450 nm) (кривая G3) — с Ce2-центрами. После разложения на компоненты гауссиана спектров ГЛ, полученных после каждой дозы облучения от 70 до  $5 \cdot 10^7$  Gy, построены кинетики изменения интенсивности компонент полосы ГЛ 3.1 eV (399 nm), 2.95 eV (420 nm) и 2.75 eV (450 nm), которые представлены на рис. 3, *b*, кривые 1–3.

Наблюдается интересное явление, что с ростом времени облучения до дозы  $5 \cdot 10^4$  Gy интенсивности полосы ГЛ 3.1 eV (399 nm), 2.95 eV (420 nm) и 2.75 eV (450 nm) не меняются, а после доз  $\geq 10^5$  Gy начинается их уменьшение, то есть снижение концентрации излучательных центров Ce1 и Ce2. Снижение выхода полос свечения 399, 420 и 450 nm после максимальной дозы  $5 \cdot 10^7$  Gy, по сравнению с выходом после пороговой дозы  $5 \cdot 10^4$  Gy, составляло приблизительно 21% соответственно. В то же время из кинетики изменения коэффициентов ОП при  $\lambda \leq 330$  nm после доз  $> 5 \cdot 10^5$  Gy наблюдается увеличение концентрации центров окраски, связанных с дефектами: Lu1–V<sub>O5</sub> (полоса 6.4 eV, 193 nm), ≡Si–V<sub>O4</sub> (5.8 eV, 213 nm), Lu1–F<sup>+</sup>–Si (5.18 eV, 238 nm), активаторным Ce<sup>3+</sup>/Ce<sup>4+</sup> (4.7 eV, 263 nm) и Ce<sup>3+</sup>/F (4.22 eV, 293 nm) (рис. 2, *b*). Следовательно, можно полагать, что в поле <sup>60</sup>Co гамма-квантов ионы Ce<sup>3+</sup> действуют как глубокие ловушки для дырок, захваченных из валентной зоны



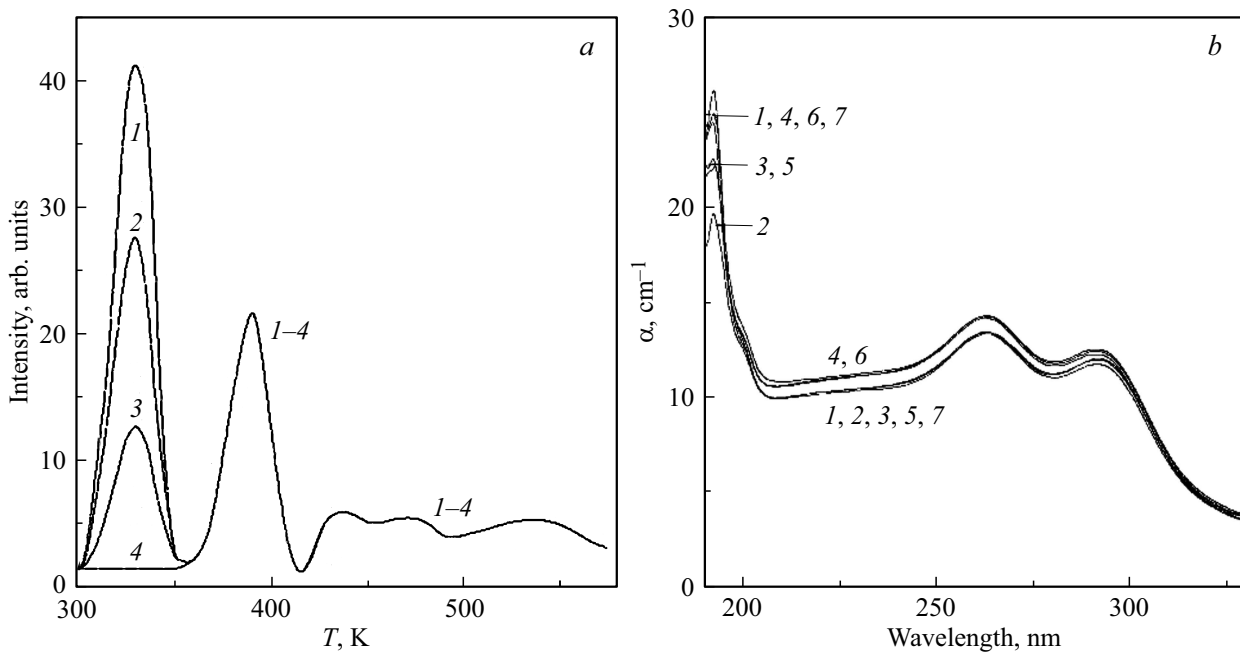
Когда электрон захватывается из зоны проводимости и переходит из возбужденного состояния в основное

4*f*-состояние, ион (Ce<sup>3+</sup>)<sup>\*</sup> испускает квант



Этот механизм будет эффективен, если не происходит прямой рекомбинации электронов и дырок или их захвата другими дефектами. Как отмечено выше, при измерении ГЛ при 305 K собственные полосы свечения 250 и 315 nm не возбуждаются. Так что уменьшение выхода ГЛ активаторного свечения Ce<sup>3+</sup> (центры Ce1 и Ce2) после дозы  $\geq 10^5$  Gy (рис. 3, *b*, кривые 1–3), по-видимому, связано с увеличением концентрации конкурирующих дополнительных вакансионных центров Lu1–F<sup>+</sup>–Si (5.18 eV, 238 nm) и Ce<sup>3+</sup>/F (4.22 eV, 293 nm), которые захватывают термализованные электроны. В связи с этим далее интересно было исследовать связь между этими гамма-наведенными центрами и известными пиками ТВ [12,27–29] в интервале температур 300–600 K. Определен спектральный состав пиков ТВ, который содержит полосу 420 nm, связанную с 5*d* → 4*f*-переходами Ce<sup>3+</sup>, а также параметры энергии активации и частотные факторы [12].

На рис. 4, *a* приведены интегральные кривые ТВ активированных LSO:Ce, облученных одинаковой дозой  $2 \cdot 10^2$  Gy при температуре 305 K, зарегистрированные в интервале температур 300–600 K, через 3 min и 1, 3 и 10 h (кривые 1–4 соответственно). Спектры ОП, измеренные до и после (вышеуказанных времен выдержки) измерения кривых ТВ до 600 K, представлены на рис. 4, *b*, кривые 1–7. Кривые ТВ обычно содержат пять пиков: 1-й — 335, 2-й — 390, 3-й — 440, 4-й — 475 и 5-й — 540 K (рис. 4, *a*, кривая 1). Из сравнения кривых ТВ (рис. 4, *a*) и спектров ОП



**Рис. 4.** *a*) Кривые термовысвечивания кристалла LSO:Ce, измеренные после облучения дозой  $2 \cdot 10^2$  Gy через 3 min и 1, 3 и 10 h — кривые 1–4 соответственно; *b*) спектры поглощения в УФ-области: исходный (кривая 1), измеренные через 1 h (3), 3 h (5), 10 h (7) и измеренные после нагрева до 600 K через 1 h (4), 3 h (6) после облучения дозой  $2 \cdot 10^2$  Gy (2).

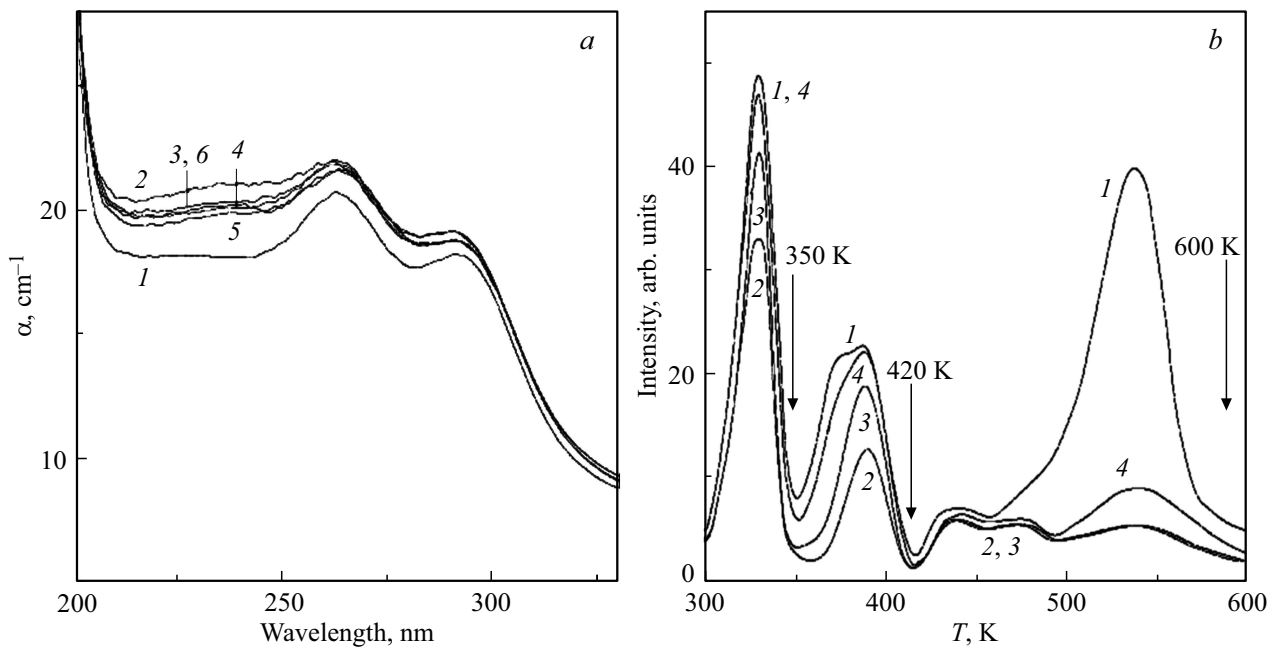
(рис. 4, *b*) обнаружено следующее: i) амплитуда самого интенсивного пика ТВ 335 K, измеренного через 3 min выдержки после облучения (кривая 1), сильно уменьшается с ростом времени выдержки 1 h (кривая 2) и 3 h (кривая 3) при 300 K, а после 10 h этот пик ТВ практически не наблюдается (рис. 4, *a*, кривая 4). В отличие от этого пика, высокотемпературные пики ТВ 390, 440, 475 и 540 K не зависят от времени выдержки (рис. 4, *a*), то есть эти ловушки стабильны при 300 K; ii) в спектре ОП после дозы  $2 \cdot 10^2$  Gy коэффициент полосы ОП 193 nm сильно уменьшается (кривая 2) по сравнению с исходным образцом (кривая 1) (рис. 4, *b*). После выдержки 1 h (кривая 3) и 3 h (кривая 5) при 300 K происходит ее увеличение, а при 10-h выдержке ее коэффициент поглощения достиг уровня исходного необлученного образца (кривая 7) (рис. 4, *b*), потому что соответствующая ловушка опустошается при 335 K. Возможно, заряженные дефекты преобразуются в незаряженное состояние путем постепенного освобождения электронов и последующей рекомбинацией с дырочным  $\text{Ce}^{4+}$  центром. Этот процесс приводит к увеличению концентрации нейтральных Lu1– $\text{VO}_5$ -центров (незаряженное состояние ловушки электронов), которые расположены вокруг центрального иона  $\text{Ce}^{3+}$  или  $\text{Lu}^{3+}$ . Существование значительного послесвечения в LSO после гамма-возбуждения связано с наличием электронной ловушки (пик ТВ 335 K) согласно [30]. Так что появление пика ТВ 335 K и уменьшение коэффициента полосы ОП 193 nm после облучения, а также восстановление полосы ОП 193 nm и исчезновение пика ТВ 335 K после 10-часовой выдержки при 305 K, возможно, объясняет

механизм возникновения послесвечения, связанный с восстановлением центров электронного захвата (полоса ОП 6.4 eV, 193 nm).

Последующие облучения дозами в интервале  $10^5$ – $5 \cdot 10^7$  Gy проводили на трех разных образцах. Чтобы выделить только стабильные центры, измерения спектров ОП проводили через неделю после каждого облучения. Поэтому наблюдаемый рост коэффициента полосы ОП 6.4 eV (193 nm) (рис. 2, *b*, кривая 6) связан с восстановлением нейтрального Lu1– $\text{VO}_5$ -центра в процессе освобождения электрона из центра окраски (полоса ОП 193 nm). Наблюдаемый слабый рост ОП в области от 200 до 290 nm (рис. 4, *b*, кривые 4 и 6) после нагрева до 600 K (после снятия кривых ТВ), возможно, связан с преобразованием более сложных дефектов.

Однако коэффициент полосы ОП 360 nm, связанной с переходом  $4f \rightarrow 5d$  в Ce1-центрах, не изменился после разных времен выдержки 1, 3 и 10 h при 305 K или после нагрева до 600 K после облучения дозой  $2 \cdot 10^2$  Gy. Далее выявляли связь между гамма-наведенными центрами окраски и ловушками для носителей заряда, которые могут обусловить снижение активаторного  $\text{Ce}^{3+}$ -свечения ГЛ после облучения дозами  $> 10^5$  Gy (рис. 3, *b*).

Были измерены спектры ОП и кривые ТВ через 5 min после гамма-облучения высокой дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy. На рис. 5, *a* приведены спектры ОП исходного образца LSO:Ce (кривая 1), после облучения дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (кривая 2), после нагрева до 600 K (для снятия ТВ и опустошения ловушек) образца, облученного дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (кривая 3), и после дополнительных малых доз 70, 200 и  $10^4$  Gy (кривые 4–6 соответственно) для за-

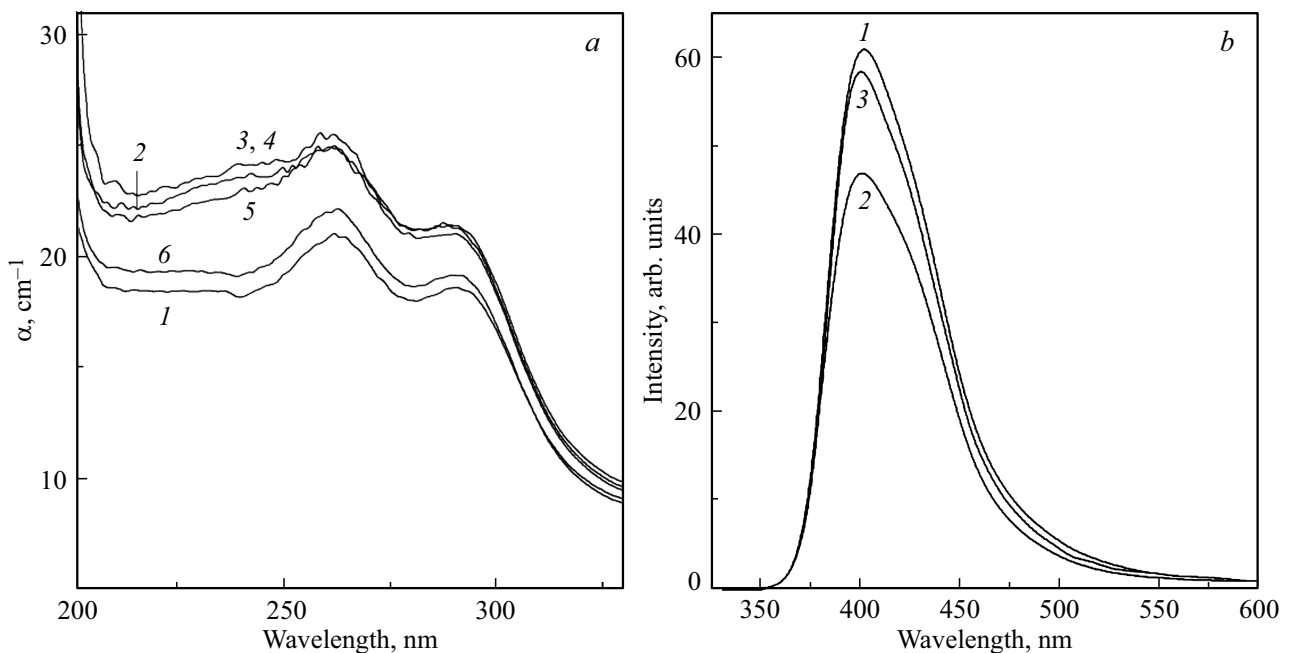


**Рис. 5.** *a*) Спектры поглощения активированного кристалла LSO:Ce в УФ-области: исходный (кривая 1), после облучения дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (2) и нагрева до 600 K при измерении ТВ (3) и последующем гамма-облучении дозами: 70, 200 и  $10^4$  Gy — кривые 4–6 соответственно. *b*) Кривые ТВ кристалла LSO:Ce: после облучения дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (1) и последующего гамма-облучения дозами 70, 200 и  $10^4$  Gy — кривые 2–4 соответственно.

полнения ловушек. После облучения  $2.3 \cdot 10^6$  Gy наблюдается рост коэффициентов полос ОП 238 nm на 15%, 263 nm на 8% и 295 nm на 6% (кривая 2) по сравнению со значениями в исходном образце (кривая 1). В кривых ТВ на рис. 5, *b* после высокой дозы  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (кривая 1), в отличие от кривой ТВ после малой дозы  $2 \cdot 10^2$  Gy (рис. 4, *a*, кривая 1), наряду с известными пиками ТВ 335, 390, 440, 475 и 540 K [12,27–29] обнаружен дополнительный пик ТВ около 373 K (рис. 5, *b*, кривая 1). После снятия кривых ТВ образца, облученного дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy, в спектре ОП (рис. 5, *a*, кривая 3) наблюдалось снижение коэффициента полосы ОП 238 nm — Lu1–F<sup>+</sup>–Si-центра, а коэффициенты полос ОП 263 — Ce<sup>3+</sup>/Ce<sup>4+</sup> и 295 nm — Ce<sup>3+</sup>/F не изменились. Эти процессы можно характеризовать тем, что при передаче тепловой энергии электронам, освобожденным из ловушек (центров окраски), они излучательно рекомбинируют с дырками на Ce<sup>4+</sup>-центрах по реакции (2). При этом сами дефекты, генерированные гамма-дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy, на которых возможна локализация заряда, могут остаться. Тогда при последующем облучении этого образца дозой  $< 2.3 \cdot 10^6$  Gy центры окраски могут заселяться носителями. Для этого образец, облученный гамма-дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy и нагретый до 605 K (при снятии ТВ), далее облучался малой гамма-дозой 70 Gy. В результате в спектре ОП (рис. 5, *a*) наблюдаются интересные факты, связанные с тем, что вместо роста коэффициента полосы ОП 238 nm происходит слабое уменьшение ее коэффициента после малых доз 70 и 200 Gy (кривые 4 и 5), но увеличение ее при последующей

дозе  $10^4$  Gy (кривая 6) до значения облученного дозой  $2.3 \cdot 10^6$  Gy и нагретого до 605 K (кривая 2). В то же время в кривых ТВ (рис. 5, *b*) с добавлением дозы 70, 200 и  $10^4$  Gy (кривые 2–4) происходит увеличение интенсивности пиков ТВ 335, 390 и 540 K. После дозы  $10^4$  Gy вблизи пика ТВ 390 K выделяется дополнительный новый пик ТВ 373 K (кривая 4), который растет до дозы  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (кривая 1). Кроме того, интенсивности пиков ТВ 335 и 390 K при дозе облучения  $10^4$  Gy выходят к насыщению и росту пика ТВ 540 K до дозы облучения  $2.3 \cdot 10^6$  Gy. Однако пики ТВ 440 и 475 K не изменяются.

Из сопоставления спектров ОП (рис. 5, *a*) и кривых ТВ (рис. 5, *b*) следует, что после облучения до дозы  $10^4$  Gy наблюдаемые пики ТВ в интервале температур 300–600 K (рис. 4, *a*), согласно [12,28,29] связаны с ростовыми вакансиями кислорода, созданными в технологическом процессе. Сравнение кристаллов ортосиликата LYSO:Ce, выращенных в атмосфере с разным содержанием кислорода (O<sub>2</sub>), показало, что с его ростом уменьшаются интенсивности вышеуказанных пиков ТВ в интервале температур 300–500 K [13], то есть эти пики связаны с вакансиями кислорода в матрице ортосиликата. Действительно, наблюдаемое после доз облучения  $> 10^4$  Gy увеличение коэффициента ОП 238 nm — Lu1–F<sup>+</sup>–Si-центра (рис. 1, *a*, кривые 4 и 5 и рис. 2, *b*, кривая 4) коррелирует с ростом амплитуды пика ТВ 540 K (рис. 5, *b*, кривые 4 и 1). Следовательно, полоса ОП 238 nm Lu1–F<sup>+</sup>–Si-центра связана с одной из ловушек для электронов.



**Рис. 6.** *a)* Спектры поглощения в УФ-области активированного кристалла LSO:Ce: исходный (кривая 1), после гамма-облучения дозой  $5 \cdot 10^7$  Gy (кривая 2), после отжига при температурах 350, 420, 600 и 773 К — кривые 3–6 соответственно. *b)* Спектры гамма-люминесценции кристалла LSO:Ce: исходный (кривая 1), после гамма-облучения дозой  $5 \cdot 10^7$  Gy (2) и после отжига при 773 К (3).

Далее исследовалось термообесцвечивание наведенных гамма-облучением полос поглощения, характеризующих центры захвата носителей заряда (центры окраски). Для этой задачи проводился последовательный отжиг пиков ТВ в течение 20 min до температур, соответствующих минимумам на кривых ТВ (отмеченные стрелками на рис. 5, *b*), с последующим охлаждением до 300 К.

На рис. 6, *a* представлены спектры поглощения, снятые до и после отжига по 20 min при температурах 350, 420 и 600 К образца LSO:Ce, облученного дозой  $5 \cdot 10^7$  Gy (рис. 6, *a*, кривые 1–6). После отжига при 350 и 420 К в спектральной области  $< 280$  nm наблюдается слабое увеличение оптического поглощения (кривые 3 и 4). Такое поведение также подтверждается в работе [7], где независимо от присутствия активатора Ce в образце LSO, гамма-облученном дозой  $2 \cdot 10^3$  Gy, после отжига  $100^\circ\text{C}$  (373 К) наблюдается уменьшение поглощения в видимой области и его увеличение в УФ-области. По-видимому, это обуславливается следующими процессами: часть термически освобожденных электронов излучательно рекомбинируют с дырочными центрами  $\text{Ce}^{4+}$ , а другая часть захватывается более глубокими ловушками. Такими глубокими ловушками для электронов могут быть  $\text{Lu1-F}^+-\text{Si}$ -центры, характеризующиеся полосой ОП 238 nm, коэффициент которой после отжига 350 и 420 К слабо увеличивается (кривые 3 и 4), а после отжига при 600 К, наоборот, снижается (кривая 5). Наблюдавшаяся в работах [11,7]

полоса ОП в видимой области 400–500 nm после гамма-облучения образца LSO толщиной 10 mm, по нашему мнению, связана с обнаруженным нами дополнительным пиком ТВ 375 К после дозы  $10^4$  Gy, который растет с накоплением дозы до  $2.3 \cdot 10^6$  Gy (рис. 5, *b*, кривые 4 и 1). Из-за малой толщины (1 mm) наших образцов по сравнению с толщиной 10-mm образцов, облученных до  $10^6$  Gy в [11, 7], мы не смогли обнаружить полосу ОП в области 410–500 nm даже после более высокой дозы  $5 \cdot 10^7$  Gy, хотя полученная концентрация этого центра окраски в нашем эксперименте была выше. Так что после самой высокой дозы  $5 \cdot 10^7$  Gy индуцированные центры  $\text{Lu1-F}^+-\text{Si}$ ,  $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$  и  $\text{Ce}^{3+}/\text{F}$  после 20 min отжига при 600 К полностью не отжигаются, поскольку сохраняются высокие коэффициенты ОП полос 238, 263 и 295 nm (рис. 6, *a*, кривая 5), по сравнению с исходным образцом (кривая 1). Эти дефекты почти полностью отжигаются при температурах  $\geq 773$  К (рис. 5, *a*, кривая 6), тогда это должно влиять и на изменение выхода ГЛ активаторного  $\text{Ce}^{3+}$ -центра. Действительно, наблюдается увеличение интенсивности выхода свечения ГЛ (рис. 6, *b*, кривая 2) до уровня ГЛ необлученного образца LSO:Ce (рис. 6, *b*, кривая 1). Это обуславливается тем, что при температуре отжига  $\geq 773$  К радиационно-наведенный междоузельный кислород диффундирует до ближайшей наведенной анионной вакансии и рекомбинирует (залечивание пары Френкеля в анионной подрешетке).



#### 4. Заключение

Проведено сравнительное изучение оптических свойств (поглощение и люминесценция) кристаллов ортосиликата-лютеция, активированного ионами церия LSO:Ce, до и после гамма-облучений ( $^{60}\text{Co}$ ) в интервале доз  $70\text{--}5 \cdot 10^7$  Gy при 310 K.

Происхождение собственного нейтрального  $V_{O5}$ -центра, предположительно на месте немостикового кислорода в связи Lu1–O5, с характерной полосой поглощения 193 nm и пиком ТВ 335 K, связано с технологическим процессом. К ростовым дефектам также относятся и взаимно перекрывающиеся полосы  $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$  при 263 nm, а также  $\text{Ce}^{3+}/\text{F}$  при 295 nm.

Показано, что при  $^{60}\text{Co}$  гамма-облучении при 310 K в интервале доз от 70 до  $5 \cdot 10^4$  Gy интенсивности полос ГЛ 399 и 420 nm (Ce1-центров) и 450 nm (Ce2-центров) не изменяются. При более высоких дозах  $> 5 \cdot 10^4$  Gy происходит уменьшение интенсивности этих полос ГЛ активаторного  $\text{Ce}^{3+}$ -центра из-за генерации дефектов в кристаллической структуре LSO:Ce: i)  $\equiv\text{Si}-V_{O4}$  (ОП 213 nm) на месте O4 в связи  $\equiv\text{Si}-O4$ , ii) разрушения самой длинной связи (0.26163 nm) Lu1–O2–Si с образованием заряженной вакансии O2 — комплексного центра Lu1–F<sup>+</sup>–Si (ОП 238 nm) и iii) Lu1–F–Si или Ce1–F–Si (ОП 295 nm). Такие предположения основаны на детальном структурном анализе в [15]. Эти центры окраски становятся конкурентами люминесцентному  $\text{Ce}^{3+}$ -центру в захвате электронов. Верхний предел стабильности гамма-сцинтиллятора является доза облучения  $10^5$  Gy.

Показано, что самый интенсивный пик ТВ 335 K (ответственный за послесвечение сцинтиллятора) связан с захватом электрона на Lu1– $V_{O5}$  (ОП 193 nm при этом уменьшается).

Комплексный центр Lu1–F<sup>+</sup>–Si (ОП 238 nm) характеризуется интенсивным (после облучения) пиком ТВ 540 K.

Появление дополнительного пика ТВ 375 K после дозы  $10^4$  Gy и его рост до дозы  $5 \cdot 10^7$  Gy связано с центром окраски в видимой области и не зависит от присутствия активатора Ce; возможно, это связано с разрушением короткой связи ( $\sim 0.23$  nm) Lu1–O1–Si с образованием заряженной вакансии O1 — комплексного центра Lu1–F–Si.

Индукцированные центры окраски при дозе облучения  $5 \cdot 10^7$  Gy с характерными полосами ОП — 238 nm–Lu1–F<sup>+</sup>–Si-центр, 263 —  $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$  и 295 —  $\text{Ce}^{3+}/\text{F}$  после термической обработки при 773 K (20 min) на воздухе полностью отжигаются, и в результате это приводит к увеличению интенсивности активаторного свечения ГЛ  $\text{Ce}^{3+}$  в гамма-поле до состояния после минимальной дозы 200 Gy. Это значит, что наведенные облучением вакансии залечиваются междоузельными кислородами (залечивание пары Френкеля в анионной подрешетке).

Можно избавиться от самого интенсивного пика ТВ при 335 K, ухудшающего быстродействие, если прекратить гамма-облучение на 10 h или поднять рабочую температуру сцинтиллятора до 360 K.

#### Благодарности

Авторы благодарят А.Ф. Ракова и С.L. Melcher за предоставление образцов и участие в обсуждении результатов работы.

#### Финансирование работы

Работа выполнена в рамках бюджетной темы по Программе НИР ИЯФ АН РУз. Приложение 1 к Постановлению Президента РУз ПП-4526 от 21.11.2019.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] J. Zhu, M. Gu, L. Jia, G. Song. *Mater. Lett.* **256**, 126410 (2019).
- [2] K.A. McDonald, M.R. McDonald, M.N. Bailey, G.K. Schweitzer. *Dalton Trans.* **47**, 37, 13190 (2018).
- [3] C. Melcher, J. Schweitzer. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **39**, 4, 502 (1992).
- [4] C.L. Melcher, M. Schmand, M. Eriksson, L. Eriksson, M. Casey, R. Nutt, J.L. Lefaucheur, B. Chai. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **47**, 3, 965 (2000).
- [5] P. Dorenbos, A.J.J. Bos, C.W.E. van Eijk. *Condens. Matter* **14**, 4, L99 (2002).
- [6] D.W. Cooke, B.L. Bennett, R.E. Muenchausen, J.-K. Lee, M.A. Nastasi. *J. Lumin.* **106**, 2, 125 (2004).
- [7] E. Auffray, A. Barysevich, A. Fedorov, M. Korjik, M. Koschan, M. Lucchini, V. Mechinski, C.L. Melcher, A. Voitovich. *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A* **721**, 76 (2013).
- [8] B. Bilki. *J. Phys. Conf. Ser.* **587**, 1, 14 (2015). DOI: 10.1088/1742-6596/587/1/012014
- [9] M. Korjik, E. Auffray. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **63**, 2, 552 (2016).
- [10] C. Hu, F. Yang, L. Zhang, R.-Y. Zhu, J. Kapustinsky, R. Nelson, Zh. Wang. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **65**, 4, 1018 (2018). DOI: 10.1109/TNS.2018.2808841
- [11] M. Kobayashi, M. Ishii, C.L. Melcher. *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A* **335**, 3, 509 (1993).
- [12] P. Dorenbos, C.W.E. van Eijk, A.J.J. Bost, C.L. Melcher. *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, 22, 4167 (1994).
- [13] S. Blahuta, A. Bessiere, B. Viana, V. Ouspenski, E. Mattman, J. Lejay, D. Gourier. *Materials* **4**, 7, 1224 (2011).
- [14] B. Liu, Z. Qi, M. Gu, X. Liu, S. Huang, C. Ni. *J. Phys.: Condens. Matter.* **19**, 43, 436215 (2007).
- [15] T. Gustafsson, M. Klintonberg, S.E. Derenzo, M.J. Weber, J.O. Thomas. *Acta Crystallogr. Sect. C* **57**, 6, 668 (2001). doi.org/10.1107/S0108270101005352
- [16] D.W. Cooke, B.L. Bennett, K.J. McClellan, J.M. Roper, M.T. Whittaker, A.M. Portis. *Phys. Rev. B* **61**, 18, 11973 (2000).

- [17] C.L. Melcher, J.S. Schweitzer. Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A **314**, 1, 212 (1992).
- [18] M. Kitaura, S. Tanaka, M. Itoh. J. Lumin. **158**, 226 (2015). doi.org/10.1016/j.jlumin.2014.10.010
- [19] В.Ю. Иванов, Е.С. Шульгин, В.А. Пустоваров, В.В. Мазуренко, В.Б. Шульгин. ФТТ **25**, 9, 1628 (2008).
- [20] Yu. Zorenko, T. Zorenko, T. Voznyak, O. Sidletskiy. J. Lumin. **137**, 204 (2013). doi.org/10.1016/j.jlumin.2013.01.012
- [21] А.Р. Силин, А.Н. Трухин. Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и стеклообразном SiO<sub>2</sub>. Зинатне, Рига (1985). 244 с.
- [22] A.Kh. Islamov, U.S. Salikhbaev, E.M. Ibragimova, I. Nuridinov, B.S. Fayzullaev, K.Yu. Vukolov, I. Orlovskiy. J. Nucl. Mater. **443**, 1–3, 393 (2013). doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.07.027
- [23] D.W. Cooke, M.W. Blair, J.F. Smith, B.L. Bennett, L.G. Jacobsohn. IEEE Trans. Nucl. Sci. **55**, 3, 1118 (2008). doi.org/10.1109/TNS.2008.922798
- [24] D. Ding, He. Feng, G. Ren, M. Nikl, L. Qin, Sh. Pan, F. Yang. IEEE Trans. Nucl. Sci. **57**, 3, 1272 (2010).
- [25] B. Liu, Ch. Shi, M. Yin, Y. Fu, G. Zhang, G. Ren. J. Lumin. **117**, 129 (2006).
- [26] K. Yang, C.L. Melcher, P.D. Rack, L.A. Eriksson. IEEE Trans. Nucl. Sci. **56**, 5, 2960 (2009).
- [27] D.W. Cooke, K.J. McClellan, B.L. Bennett, J.M. Roper, M.T. Whittaker, R.E. Muenchausen. J. Appl. Phys. **88**, 12, 7360 (2000).
- [28] D.W. Cooke, B.L. Bennett, K.J. McClellan, J.M. Roper, M.T. Whittaker. J. Lumin. **92**, 83 (2001).
- [29] A.F. Rakov, U.S. Salikhbaev, A.Kh. Islamov, R.H. Bartram, C.L. Melcher. J. Lumin. **130**, 2004 (2010).
- [30] A. Lempicki, J. Glodo. Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A **416**, 2–3, 333 (1998).

Редактор *Е.В. Толстякова*