

УДК 538.95—405 : 539.12.04

© 1992

**ФОРМИРОВАНИЕ ТРЕКОВ
ТЯЖЕЛЫХ МНОГОЗАРЯДНЫХ ИОНОВ
НА ЧИСТОЙ И ЗАСЕЛЕННОЙ ОСТРОВКАМИ ЗОЛОТА
ПОВЕРХНОСТИ ДИЭЛЕКТРИКА**

И. В. Воробьева, Е. А. Тер-Ованесьян

Методами электронной микроскопии сопоставлена структура треков ионов ^{132}Xe с энергией ≈ 1 МэВ/нукл., созданных на чистой поверхности монокристалла гипса ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) и поверхности с напыленной в вакууме перед облучением островковой пленкой золота со средним радиусом островков $R_1 \approx 5$ нм либо $R_2 \approx 10$ нм. Угол облучения $\approx 1^\circ$. Обсуждены механизмы формирования треков, основанные на эмиссии δ -электронов и взаимодействии с поверхностью ударной волны, возбужденной при пролете иона в приповерхностном слое гипса.

При взаимодействии тяжелого многозарядного иона (ТМИ) с твердым телом практически вся энергия иона выделяется в электронную подсистему тормозящей среды. Формирование трека будет определяться последующей передачей энергии из электронной подсистемы в решетку и различными процессами релаксации поглощенной решеткой энергии, такими как теплопроводность, распространение ударной волны, фазовые превращения, миграция и взаимодействие дефектов и т. д. Таким образом, структура трека должна зависеть как от характеристик иона, так и от физических свойств тормозящей среды. В совершенных металлах, например, где возмущение, вызванное пролетом иона, ограничивается в основном электронной подсистемой, треки вообще не формируются. В диэлектриках с отличающимися физическими и химическими свойствами вклады различных процессов в формирование трека могут существенно отличаться, поэтому невозможно предложить единственный механизм формирования треков, который был бы применим для любых твердых тел. Более того, многие детали процесса формирования треков до сих пор экспериментально не исследованы и теоретически не описаны.

При обсуждении механизмов формирования треков, как правило, основываются на экспериментальных данных о структуре треков в объеме твердого тела. Объемные треки в различных диэлектриках исследованы многими авторами, однако результаты большинства таких экспериментов не дают информации об истинных размерах и структуре трека. Например, при использовании методики химического травления полностью удаляется дефектная область ядра трека. Исследование объемных треков с помощью электронного микроскопа, во-первых, затруднительно, так как требует приготовления тонких слоев, прозрачных для электронного пучка; во-вторых, как правило, не дает достоверной информации, так как ядро трека заваловано окружающей его областью напряженного вещества.

Более информативным может быть электронно-микроскопическое исследование поверхностных и островковых треков, которые при малых углах влета

ионов имеют гораздо большие размеры, чем треки в объеме, что позволяет детальнее исследовать структуру дефектной области, созданной непосредственно ионом.

Поверхностный трек (ПТ) представляет собой участок поверхности, на котором произошло изменение ее профиля, вызванное пролетом иона. Впервые ПТ наблюдались в 1962 г. на поверхности LiF [1]. Круг диэлектриков, на поверхности которых наблюдались ПТ, весьма ограничен (UO_2 [2], гипс [3], колloidий [4], LiF [3]). Образование ПТ в одних работах связывалось с всплеском температуры, возникающим вдоль траектории ТМИ [4], в других — с действием ударной волны, возбуждаемой пролетом иона [2, 3].

Островковый трек (ОТ) формируется в островковой металлической пленке, расположенной на поверхности любого твердого тела, и представляет собой участок пленки, где в результате пролета иона произошло изменение структуры островков, наиболее часто — просто их удаление с поверхности. ОТ наблюдалась многими авторами [5—7]. В первых работах их формирование объяснялось на основе модели изолированной частицы [7], согласно которой трек образуется вследствие испарения островков, пересекаемых ТМИ. Дальнейшие исследования показали, что при формировании ОТ островки не только испаряются, но и могут как целое сбрасываться с поверхности диэлектрика под действием ударной волны, возбуждаемой ионом в подложке под островками [8]. Однако проведенные ранее эксперименты не позволили разделить вклад этих процессов в формирование ОТ.

В статье представлены экспериментальные данные, полученные при сопоставлении структур поверхностного и островкового треков, созданных одним и тем же ионом под малым углом, последовательно пересекающим островковую пленку и подложку. Такое сопоставление позволило выделить в структуре островкового трека участки, сформированные при движении иона через слой островков и в подложке под островками, и более обоснованно судить о механизмах формирования ОТ на различных его участках.

Все эксперименты выполнены с использованием либо потока ионов $^{132}_{54}Xe$ (Дубна, ОИЯИ ЛЯР) с энергией ≈ 1 МэВ/нукл., либо осколков деления ядер $^{253}_{95}Cf$. В большинстве экспериментов угол облучения ϕ составлял $1—2^\circ$ по отношению к поверхности. Треки наблюдались электронно-микроскопической техникой реплик.

1. Эксперимент

Объектом исследования были выбраны монокристаллы гипса ($CaSO_4 \cdot 2H_2O$), на поверхности которых формируются достаточно протяженные ПТ и ОТ. Фотография типичного ПТ, созданного ионом, влетающим под углом $\phi \approx 1.5^\circ$, представлена на рис. 1, а. ПТ наблюдались после оттенения облученного скола монокристалла гипса золотом под углом 8° . Вначале ПТ представляет собой канавку, вещества из которой частично перенесено на ее края. Затем канавка переходит в ориентированную вдоль траектории иона выпуклость, высота которой убывает по мере удаления иона от поверхности в глубь диэлектрика. В [4] показано, что под выпуклостью вдоль траектории иона имеется полый канал. На рис. 1, б показан отпечаток трека, позволивший рассчитать глубину канавки и построить профили поверхности на различных участках траектории иона. Для получения отпечатка на облученную поверхность нормально к ней напылялась углеродная пленка, которая затем отделялась от поверхности. Сторона углеродной пленки, контактировавшая с облученной поверхностью, оттенялась золотом под углом 8° . Таким образом, канавка в структуре трека на поверхности гипса соответствовала на углеродной пленке выпуклость, высота которой рассчитывалась по известному углу оттенения и длине тени.

На рис. 2 представлены рассчитанные профили поверхности на различных участках траектории иона, показанной точкой. Видно, что лишь $1/3$ недостающего объема вещества вытеснена на берега канавки, а $2/3$ удаляется с поверхности. Ранее с помощью коллектора

нами исследована структура вещества, удаляемого из области трека. Установлено, что часть вещества удаляется с поверхности в виде кусков, ширина которых близка к поперечному размеру канавок [3]. Неправильная форма кусков свидетельствует о хрупком механическом разрушении поверхности.

Фотография типичного островкового трека, созданного ионом при $\varphi \approx 1.5^\circ$,

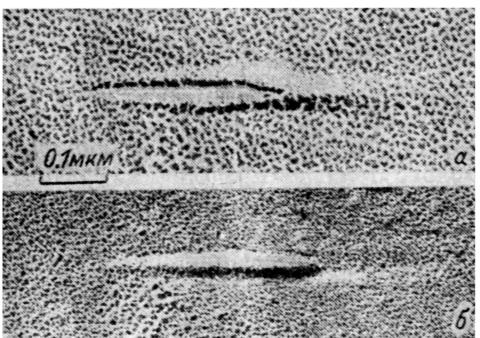
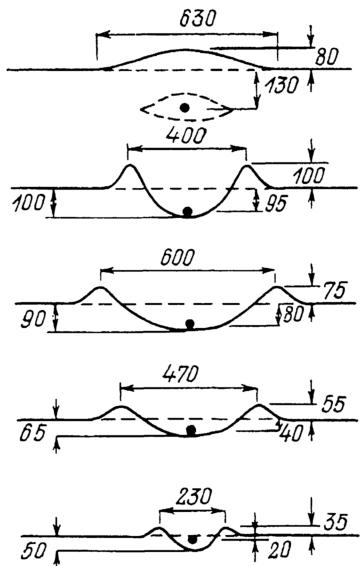


Рис. 1. Поверхностный трек в гипсе (а). Отпечаток поверхностного трека (б). Ион двигался слева направо.

представлена на рис. 3. Трек сформировался в островковой пленке золота, напыленной в вакууме 10^{-5} Торр на поверхность гипса перед облучением. Длина и ОТ, и ПТ сильно зависят от угла влета иона в кристаллах. Так как в наших экспериментах угол φ измерялся с погрешностью $\pm 0.5^\circ$, для точного определения геометрии формирования треков сопоставлены структуры ОТ и ПТ, созданных одним и тем же ионом. Эксперимент заключался в следующем. Поверхность гипса, покрытая напыленной в вакууме островковой пленкой золота, облучалась ТМИ. Вдоль траектории каждого иона на поверхности гипса формировались и ОТ, и ПТ. После облучения поверхность запылилась углеродом так, чтобы получился слой толщиной ≈ 50 нм. Затем углеродная пленка вместе с оставшимися после облучения островками золота отделялась от подложки и сторона пленки, контактировавшая с гипсом, оттенялась золотом под углом 8° . Таким образом, можно было одновременно наблюдать ОТ и отпечаток ПТ, созданные одним и тем же ионом. Такие треки в дальнейшем называются совмещенными.

Рис. 2. Профили поверхностного трека в сечениях, соответствующих разным глубинам траектории движения иона $^{132}_{\text{Xe}}$ под поверхностью.

Вверху штрихом показан полый канал, формирующийся вокруг траектории иона в объеме монокристалла гипса. Размеры указаны в Å.



Исследовались образцы двух типов: первый — с островками, радиус которых $R_1 \approx 5$ нм, второй — с $R_2 \approx 10$ нм. Как правило, островки имели полусферическую форму. Электронно-микроскопический снимок совмещенных поверхностного и островкового (в пленке с $R_1 \approx 5$ нм) треков представлены на рис. 4, а. Считая, что островковый трек начинает формироваться, когда ион входит в слой островков (точка А на рис. 4, б), а поверхностный — когда ион пересекает поверхность кристалла (точка В на рис. 4, б), и зная радиус островков, можно найти угол φ между траекторией иона и поверхностью кристалла.

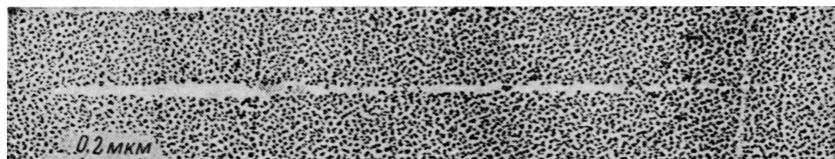


Рис. 3. Трек иона $^{132}_{54}\text{Xe}$ в островковой пленке золота на поверхности гипса.

Зная φ и длину поверхностного трека, можно найти максимальное расстояние $H_{\text{п}}$ от траектории иона до поверхности, при котором еще формируется поверхностный трек, и аналогично величину H_0 для островкового трека (рис. 4, б). Для трека (рис. 4, а) величины H_0 и $H_{\text{п}}$ оказались соответственно равными ≈ 25 и 10 нм.

В структуре островкового трека можно выделить два участка: первый участок (AB) формируется при пересечении ионом слоя островков без нарушения профиля поверхности, а второй участок (BC) — при движении иона в объеме кристалла под островковой пленкой. Для островковой пленки с $R_1 \approx 5$ нм ширина островкового трека на первом участке составляет 25 — 30 нм (рис. 4; 5, б). На втором участке сначала формируются и поверхностный, и островковый треки с примерно равной шириной (40 — 50 нм). Затем островковый трек шириной 25 — 30 нм продолжает формироваться до глубины $H_0 \approx 25$ нм, а поверхность гипса при этом не искажается. Таким образом, длина ОТ на поверхности гипса в островковой пленке значительно превосходит длину ПТ. Это различие особенно отчетливо видно на рис. 5, где представлены отдельно ПТ, ОТ и совмещенные ОТ и ПТ, полученные при одинаковых условиях облучения.

В пленках с $R_2 \approx 10$ нм первый участок AB островкового трека более протяженный (рис. 6). Ширина трека на этом участке составляет 20 нм, т. е. по ширине трека удаляется один островок. На втором участке островковый трек формируется лишь до глубины $H_0 \approx 8$ нм (с холма поверхности трека островки уже не удаляются; рис. 6, б).

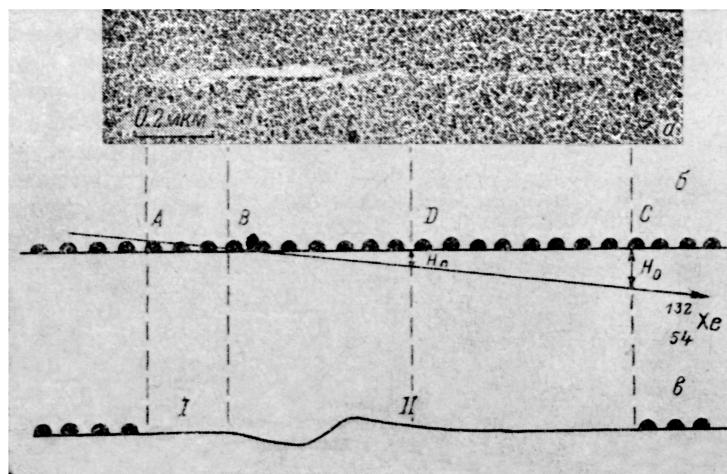


Рис. 4.

а — совмещенные поверхностный и островковый треки иона $^{132}_{54}\text{Xe}$ в гипсе. Средний радиус островков при формировании островкового трека $R = 5$ нм; б — схематическое изображение траектории иона и островковой пленки на поверхности гипса; в — схематическое изображение совмещенных ОТ и ПТ. Островки удалены с участков I и II. В начале участка II формируется поверхностный трек (искажение профиля поверхности). $H_{\text{п}} \approx 10$ нм, $H_0 \approx 25$ нм.

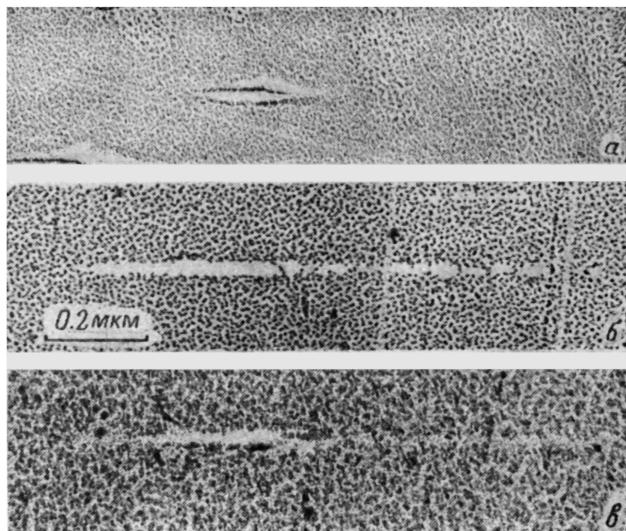


Рис. 5. Поверхностный (α) и островковый (β) треки в гипсе. Совмещенные островковый и поверхности треки (γ). $\varphi \approx 1.5^\circ$.

2. Обсуждение результатов

На первом участке трека островки, пересекаемые ионом, могут испаряться [7] либо «подпрыгивать» с подложки вследствие их импульсного разогрева [8]. Интересно отметить, что на этом участке трека в островковых пленках с радиусом островков $R_1 \approx 5$ нм по ширине трека удаляются не только островки, пересекаемые ионом, но и соседние. Такие островки могут получать энергию в результате облучения δ -электронами, эмиттированными из пересекаемых ионом островков. Когда эта энергия будет передана решетке, островок импульсно расширяется и может «подпрыгнуть». Аналогичная ситуация уже обсуждалась в [10] при формировании островковых треков на поверхности массивного металла.

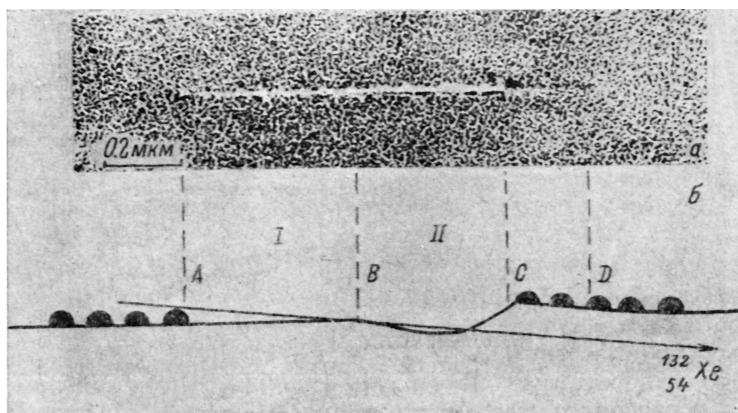


Рис. 6.

α — совмещенные ОТ и ПТ. Островковый трек сформировался в пленке с $R \approx 10$ нм; б — схематическое изображение совмещенных ОТ и ПТ. На участке II островковый трек формируется лишь в области канавки поверхности трека между точками В и С.

Для того чтобы полусферический островок мог оторваться от подложки, необходимо, чтобы энергия термоупругих напряжений в нем превосходила энергию адгезионной связи с подложкой, т. е. должно выполняться соотношение

$$\frac{2}{3} \pi R^3 \frac{G(\gamma \Delta T)}{2} \geq \pi R^2 a, \quad (1)$$

где R — радиус, островка, G — модуль Юнга, γ — коэффициент линейного расширения вещества островка, a — удельная энергия адгезионной связи островка с подложкой.

Из (1) следует, что для отрыва нужно нагреть островок до температуры

$$\Delta T \geq \left(\frac{3a}{RG\gamma^2} \right)^{1/2}, \quad (2)$$

т. е. островок должен получить энергию

$$E_T = \frac{2}{3} R^3 \pi c \Delta T = \frac{2\pi c R^3}{\gamma} \left(\frac{a}{3GR} \right)^{1/2}, \quad (3)$$

где c — удельная теплоемкость вещества островка.

Оценим энергию, которая может быть сообщена островкам в результате облучения δ -электронами, эмиттированными из пересекаемых ТМИ островков. На расстоянии r от траектории иона в предположении цилиндрической симметрии энергия δ -электронов, пересекающих единичную площадь, оценивается соотношением

$$\epsilon = \frac{2}{3} k \frac{dE}{dx} \frac{1}{2\pi r}, \quad (4)$$

где dE/dx — удельные электронные потери энергии ТМИ в золоте; $2/3$ — множитель, учитывающий, что островки находятся друг от друга на расстоянии $\sim R$; k — коэффициент, показывающий, какая доля энергии уносится δ -электронами из пересекаемого ионом островка. Файн и др. [11] рассчитали, что $\simeq 62\%$ энергии, выделенной ионом в тормозящей среде, преобразуется в кинетическую энергию δ -электронов. Так как наименее энергетичные электроны не смогут преодолеть потенциальный барьер на границе островка, мы будем считать $k \simeq 0.5$. Учитывая, что траектория иона не обязательно проходит по диаметру островка; будем считать, что $r \simeq 2R$. Это предположение основано на том, что по ширине трека, как правило, удаляются два островка. Тогда соседний с пересекаемым ТМИ островок получит энергию

$$E_e = \frac{1}{2} \pi R^2 \epsilon = \frac{1}{12} kR \frac{dE}{dx}. \quad (5)$$

Из условия $E_r = E_e$, следует выражение для критического радиуса островка R^* , который может быть удален описанным выше механизмом

$$R^* = \left(\frac{k\gamma (dE/dx)}{24\pi c} \right)^{1/2} \left(\frac{3G}{a} \right)^{1/2}. \quad (6)$$

Придавая величинам, входящим в (6), следующие значения: $dE/dx = 4.8 \cdot 10^{-6}$ Дж/м, $k=0.5$, $\gamma=2 \cdot 10^{-5}$ К $^{-1}$, $c=2.4 \cdot 10^6$ Дж/м $^3 \cdot$ К, $G=8 \cdot 10$ Н/м 2 , $a=10^{-1}$ Дж/м 2 , получаем $R^*=6$ нм. Из выражений (3) и (5) видно, что $E_r \sim R^{1/2}$, а $E_e \sim R$. Следовательно, при $R > R^*$ энергия E_r , необходимая для отрыва островка, растет быстрее, чем энергия E_e , сообщаемая островку δ -электронами. Таким образом, R^* — максимальный радиус островка, который может быть удален описанным выше механизмом.

Полученное значение R^* согласуется с экспериментальными данными, согласно которым в островковых пленках с радиусом островков $R=5$ нм по

ширине первого участка трека удаляется на 2—3 островка. Отметим, что при таком механизме островки, облучаемые б-электронами, должны приобретать отрицательный заряд. Это согласуется с экспериментами, в которых определялось зарядовое состояние распыленного вещества при облучении островков золота осколками деления и было показано, что значительная часть распыленного вещества заряжена отрицательно [12].

На втором участке трека островки также могут удаляться с поверхности под действием облучения электронами, возбужденными ионом в гипсе. Однако эффективность механизма электронного облучения снижается, поскольку б-электроны тормозятся средой по мере проникновения иона в подложку.

Формирование островкового трека на этом участке, более вероятно, будет определяться процессами, связанными с импульсным разогревом решетки вокруг траектории ТМИ. При малых H разогрев подложки приводит к формированию поверхностного трека. При этом часть вещества подложки испаряется, а часть вещества под действием термических напряжений перемещается к краям трека, что приводит к искажению профиля поверхности. Импульсный разогрев ограниченной области в холодной матрице может привести к формированию

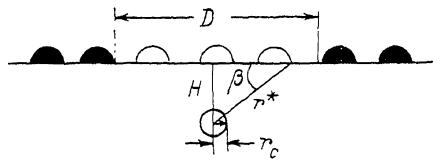


Рис. 7. Схемы формирования ОТ под действием ударной волны, возбуждаемой ионом в подложке на глубине H .

Светлыми изображены островки, удаляемые с поверхности.

ударной волны. Отражение такой волны от поверхности приводит к появлению больших растягивающих напряжений и отрыву кусков вещества (т. е. к формированию поверхностного трека) [2, 8, 13].

Когда ион движется на глубине H , при которой поверхностный трек не формируется, энергии ударной волны может хватить для «стягивания» островков золота с поверхности. Рассмотрим возможность удаления островков с поверхности под действием ударной волны. Как и в [2], мы предположили, что ударная волна создается в результате импульсного теплового расширения цилиндрической области радиуса r_c вокруг траектории иона. Для количественной оценки r_c использованы результаты работы [14], в которой показано, что цилиндрическая область с $r_c \approx 3$ нм и давлением $P_c \approx 2 \cdot 10^5$ бар является ядром объемного трека в гипсе.

Используя соотношения, полученные в [15], и указанные выше значения r_c и P_c , с помощью ЭВМ мы рассчитали все параметры ударной волны: давление за фронтом ударной волны $P(r)$, ширину фронта $L(r)$, скорость фронта $v(r)$, где r — расстояние от траектории ТМИ. Рассмотрим условия отрыва островка радиуса R при движении иона в гипсе на глубине $H > r_c$. Когда ударная волна проникает в островок и отражается от его поверхности, возникает область растяжения. Математически процесс отражения можно представить распространением волны другого знака от зеркального источника. Следовательно, если при вхождении ударной волны в островок давление на границе островок—подложка достигало величины $P(r)$, то после отражения ударной волны давление на этой границе будет равно $-P(r+2R)$. Здесь мы предполагаем, что ударная волна в среднем проходит в островке расстояние $\approx 2R$. Тогда островок оторвется, если выполняется условие

$$P(r+2R) \cos \beta \geq \frac{\alpha}{a}, \quad (7)$$

где α — энергия адгезионной связи островка с подложкой; a — межатомное расстояние; β — угол, зависящий от расположения островка над траекторией

иона (рис. 7). Однако это условие, на наш взгляд, является необходимым, но не достаточным, так как давление должно действовать в течение некоторого времени τ , необходимого для отрыва островка. Найдем кинетическую энергию E_k , сообщенную некоторому элементу островка с площадью основания ΔS и объемом ΔV (мы вводим ΔS и ΔV , так как r сравнимо с R)

$$E_k = [P(r + 2R) \cos \beta] \cdot \Delta S \cdot \Delta V / 2, \quad (8)$$

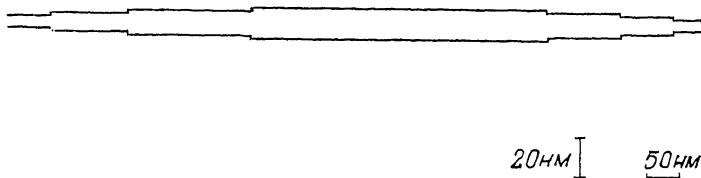


Рис. 8. Рассчитанная на ЭВМ форма островкового трека при $R=5$ нм, $\varphi=1.5^\circ$.

где ρ — плотность золота. Островок оторвется, если $E_k \geq \alpha \Delta S$. Учитывая, что

$$\tau = L(r+2R)/v(r+2R), \quad \frac{\Delta V}{\Delta S} = \frac{V}{S} = \frac{2}{3} R,$$

получим условие отрыва островка

$$P(r+2R)L(r+2R)H/v(r+2R)r \geq \left(\frac{4}{3}\rho\alpha R\right)^{1/2}. \quad (9)$$

Тогда, последовательно увеличивая H , можно для каждого значения H найти r^* — максимальное расстояние от траектории иона до поверхности, на котором удаляются островки, а следовательно, и ширину трека D (рис. 7).

На рис. 8 приведена расчетная форма островкового трека при $R=5$ нм, $\varphi=1.5^\circ$. При расчете мы считали, что под действием ударной волны трек начинает формироваться на глубине $H=r_c=3$ нм (при меньших H расчет некорректен). Сравнение с истинным треком на участке BC (рис. 4, а либо рис. 5, б) показывает, что формы истинного и расчетного треков и значения H хорошо согласуются.

Из выражения (9) следует, что величины H и D зависят не только от характеристик ударной волны, но и от радиуса островков. В таблице приведены расчетные значения D_{max} и H для треков в островковых пленках с различными R . Видно, что с увеличением радиуса островков D_{max} и H уменьшаются.

Для пленок с $R=10$ нм удаление островков может происходить только при формировании первого участка ПТ. Таким образом, проведенный расчет, не претендующий на точное количественное определение всех параметров островкового трека, качественно хорошо объясняет зависимость этих параметров от радиуса островка.

Таким образом, экспериментально установлено, что размеры островковых треков на поверхности диэлектриков при малых углах облучения могут значительно превышать размеры поверхностных треков. Различие в размерах является следствием того, что формирование островковых треков происходит как при движении иона через слой островков, так и при движении иона в подложке

Зависимость вычисленных параметров островкового трека от радиуса островков R

R , нм	D_{max} , нм	H_0 , нм
5	16	30
6	8	17
7	6	7
8	6	3
10	6	3

под островками. Соотношение длины и ширины различных участков островкового трека существенно зависит от радиуса островков R . Процесс формирования ОТ в мелкозернистых островковых пленках сложен и включает в себя, во-первых, испарение островков, пересекаемых ионом; во-вторых, подпрыгивание островков, импульсно разогретых облучением δ -электронами; в-третьих, сбрасывание островков под действием ударной волны, возбуждаемой ионом в диэлектрической подложке. При формировании ОТ на поверхности металлов существенны лишь два первых механизма.

Показано, что островковый трек может формироваться при такой глубине залегания траектории иона в подложке под островками, когда поверхность кристалла не искажается. Таким образом, островковая пленка может играть роль индикатора процессов преобразования энергии, выделенной ТМИ в объеме твердого тела. Отметим, что островковые треки в отличие от поверхностных и объемных регистрируются на поверхности практически всех твердых тел (диэлектрики, полупроводники, металлы), что делает их изучение особенно перспективным.

Список литературы

- [1] Knorr T. G. // J. Appl. Phys. 1963. V. 34. N 9. P. 2767—2773.
- [2] Ronchi C. // J. Appl. Phys. 1973. V. 44. N 8. P. 3574—3584.
- [3] Воробьева И. В., Монастыренко В. Е., Перельгин В. П. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 7. С. 1964—1968.
- [4] Воробьева И. В., Гегузин Я. Е., Монастыренко В. Е. // ФТТ. 1984. Т. 28. № 8. С. 2402—2405.
- [5] Kelsch I. I., Kammerer O. F., Buhl P. A. // Brit. J. Appl. Phys. 1960. V. 11. P. 555—562.
- [6] Merkle K. L. // Phys. Letters. 1962. V. 9. P. 150—152.
- [7] Goland A., Paskin A. // J. Appl. Phys. 1964. V. 35. N 7. P. 2188—2194.
- [8] Воробьева И. В., Гегузин Я. Е., Монастыренко В. Е. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 1. С. 163—167.
- [9] Воробьева И. В., Гегузин Я. Е., Монастыренко В. Е. // Поверхность. 1986. № 4. С. 141—143.
- [10] Воробьева И. В., Гегузин Я. Е., Монастыренко В. Е., Тер-Ованесьян Е. А. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 11. С. 3397—3403.
- [11] Fain J., Monnin M., Montret M. // Rad. Res. 1974. V. 57. P. 379—389.
- [12] Барапов И. А., Цепелевич С. О., Обнорский В. В. // Атомная энергия. 1986. Т. 60. № 1. С. 62—63.
- [13] Biersack J., Fink D., Mertens P. // J. Nucl. Met. 1974. V. 53. P. 193—195.
- [14] Воробьева И. В., Монастыренко В. Е., Перельгин В. П. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 10. С. 1—5.
- [15] Bitensky J. S., Parilis E. S. // Nucl. Instr. Meth. 1987. V. B21. P. 26—32.

Харьковский государственный университет
им. А. М. Горького

Поступило в Редакцию
30 января 1991 г.
В окончательной редакции
3 июля 1991 г.