

## Аэрозольный синтез высокодисперсного люминофора $Y_3Al_5O_{12} : Ce^{3+}$ с интенсивной фотолюминесценцией

© Х.А. Абдуллин<sup>1</sup>, А.Е. Кемельбекова<sup>2</sup>, В.М. Лисицын<sup>3</sup>, Д.М. Мухамедшина<sup>2</sup>,  
Р.Р. Немкаева<sup>1</sup>, А.Т. Тулегенова<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Национальная нанотехнологическая лаборатория открытого типа (ННЛОТ), Казахский национальный университет, Алматы, Казахстан

<sup>2</sup> Сатпаев Университет, Физико-технический институт, Алматы, Казахстан

<sup>3</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, Россия

E-mail: kh.abdullin@physics.kz

Поступила в Редакцию 3 июня 2019 г.

В окончательной редакции 3 июня 2019 г.

Принята к публикации 4 июня 2019 г.

Для получения высокодисперсного порошка алюмо-иттриевого граната, демонстрирующего интенсивную фотолюминесценцию в видимой области света, разработан простой метод пиролиза аэрозоля раствора нитратов иттрия, алюминия и церия с добавлением мочевины или лимонной кислоты, с последующим кратковременным отжигом. Характеризация синтезированных образцов (спектры фотолюминесценции, рентгенофазовый анализ, спектры комбинационного рассеяния) показала, что интенсивная фотолюминесценция достигается только в узком окне технологических условий: концентрации раствора нитратов и концентрации лимонной кислоты или мочевины. Интенсивность фотолюминесценции увеличивается при отжиге синхронно с увеличением размера кристаллитов, что наряду с оптимальной концентрацией церия ( $\sim 0.5$  ат%) является определяющим фактором для получения качественных образцов. Синтезированные порошки обладали интенсивной фотолюминесценцией и высоким оптическим совершенством, о чем свидетельствует наблюдение мод шепчущей галереи.

**Ключевые слова:** аэрозольный синтез, высокодисперсный  $YAG : Ce^{3+}$ , моды шепчущей галереи.

DOI: 10.21883/FTT.2019.10.48265.501

### 1. Введение

Энергоэффективные белые светодиоды (Energy-efficient white light-emitting diodes WLED) в настоящее время широко используются в качестве твердотельных оптических источников в различных областях, таких как общее освещение, автомобильное освещение, источники подсветки экрана дисплея и т.д. [1,2]. Белый свет можно получить с помощью различных комбинаций светодиодов и люминофоров. В настоящее время синие светодиоды InGaN–AlGaIn и система желтых люминофоров используется в качестве коммерческого WLED из-за простоты конструкции и низкой стоимости, а также хорошего индекса цветопередачи (colour rendering index CRI) [3].

Люминофор  $Y_3Al_5O_{12} : Ce^{3+}$  ( $YAG : Ce^{3+}$ ) является одним из оптимальных люминофорных материалов для WLED благодаря его высокой квантовой эффективности, высокому показателю преломления, прочности, превосходной химической и термической стабильности [3,4]. Традиционно люминофоры  $YAG : Ce^{3+}$  синтезируются посредством твердофазной реакции с длительным отжигом при высокой температуре ( $> 1500^\circ C$ ). Для получения порошка, используемого при изготовлении WLED, необходима операция последующего размола,

которая может вызвать загрязнение материала, поскольку  $YAG : Ce^{3+}$  — очень твердый материал (около 8.5 по шкале Мооса).

Чтобы преодолеть вышеуказанные недостатки, разрабатываются различные методы для производства чистых и гомогенных высокодисперсных люминофоров  $YAG : Ce^{3+}$ , такие, как метод контролируемой кристаллизации стекла [5], пламенный пиролиз [6], золь-гель процесс [7], [8], лазерная абляция [9], гидротермальный метод с использованием микроволнового излучения [10], соосаждение из растворов соответствующих солей [11], метод пиролиза аэрозоля [12].

При получении высокодисперсных порошков  $YAG : Ce^{3+}$ , обладающих интенсивной фотолюминесценцией (ФЛ), проблемой является достижение высокой кристалличности материала и предотвращение потери церия. Поэтому часто высокодисперсный  $YAG : Ce^{3+}$  имеет почти белый цвет и слабую ФЛ, интенсивность которой невысокая по сравнению с интенсивностью ФЛ коммерческих „желтых“ люминофоров. В настоящей работе высокодисперсный  $YAG : Ce^{3+}$  был получен простым методом пиролиза аэрозоля с последующим кратковременным отжигом, интенсивность ФЛ образцов, синтезированных в оптимальных условиях, составляет

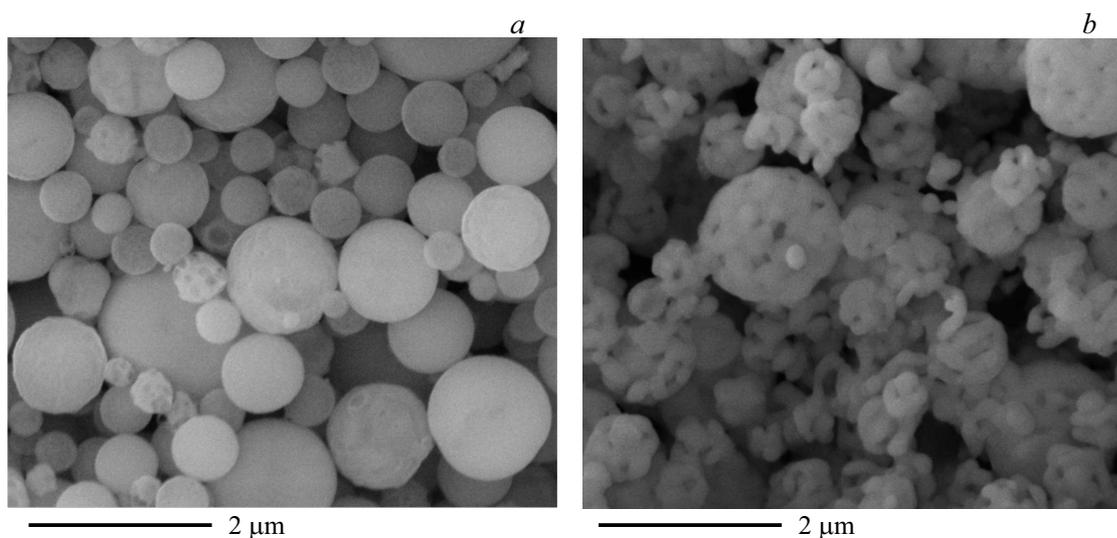
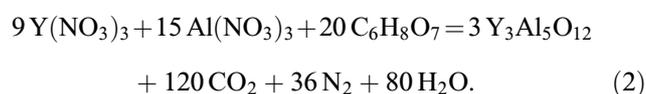
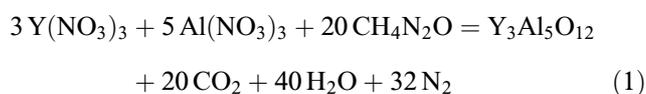


Рис. 1. SEM-изображения: *a* — образец после синтеза при 800°C, *b* — тот же образец, отожженный при 1550°C.

~ 40% от интенсивности ФЛ люминофора  $YAG : Ce^{3+}$  промышленного качества.

## 2. Экспериментальная часть

Рабочий раствор готовили при молярном соотношении иттрия к алюминию 3 : 5 путем растворения нитрата иттрия ( $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ , Sigma Aldrich), нитрата алюминия ( $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ , Sigma Aldrich) и нитрат церия ( $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ , Sigma Aldrich) в деионизованной воде. Концентрация раствора по церию составляла 0.5 ат%. Для нейтрализации азотной кислоты, которая выделяется при термическом разложении нитратов иттрия и алюминия, в рабочий раствор добавляли мочевины ( $NH_2CONH_2$ ) или лимонную кислоту ( $C_6H_8O_7$ ), при этом возможны следующие реакции, предотвращающие выделение кислоты



Синтез порошков проводился методом пиролиза аэрозоля. Пьезоэлектрический ультразвуковой генератор генерировал аэрозоль из рабочего раствора, аэрозоль переносился воздушным потоком, создаваемый компрессором, в вертикальную трубчатую печь, нагретую до 800°C. В горячей зоне печи происходил пиролиз аэрозоля, частицы оксидов улавливались цилиндрическим электростатическим фильтром на выходе из печи и легко отделялись от стенок фильтра после синтеза.

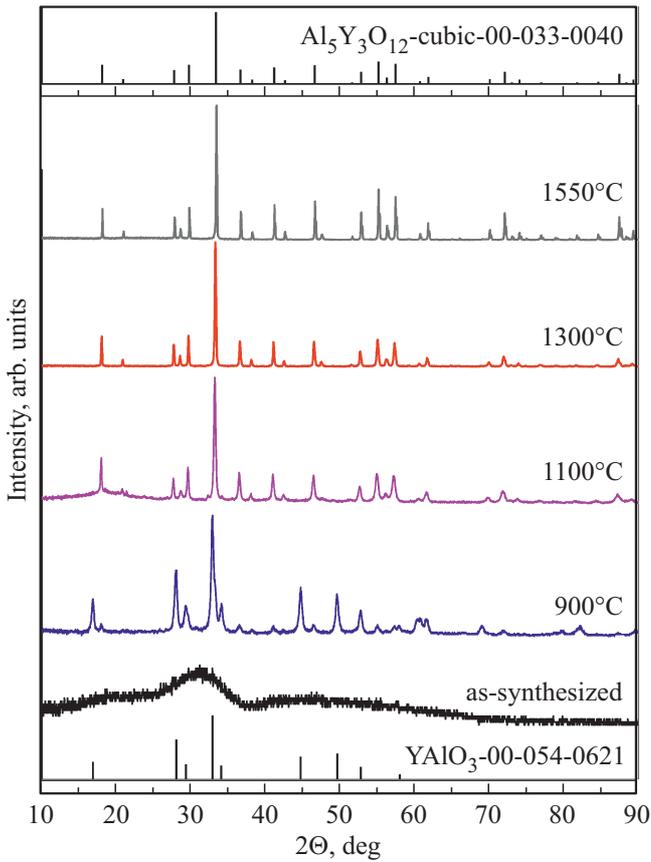
Морфологию образцов исследовали с помощью сканирующего электронного микроскопа (SEM) Quanta 3D

200i FEI. Спектры ФЛ образцов  $YAG : Ce^{3+}$  измеряли при комнатной температуре флуоресцентным спектрометром Cary Eclipse (Agilent) при возбуждении импульсной ксеноновой лампой. Рамановские спектры исследовали при комнатной температуре с использованием спектрометра Solver Spectrum (NT-MDT) с лазерным возбуждением при 633 nm, этот же спектрометр применен для исследования микро-фотолуминесценции ( $\mu$ -PL) при комнатной температуре. Спектры  $\mu$ -PL возбуждались лазером 473 nm через сто-кратный объектив Mitutoyo, с диаметром лазерного пятна ~ 2  $\mu$ m. Исследования рентгеновской дифракции (XRD) проведены на дифрактометре MiniFlex Rigaku с  $CuK_{\alpha}$ -излучением.

## 3. Результаты и обсуждение

Типичные SEM-изображения порошка, полученного путем пиролиза при 800°C раствора с лимонной кислотой, показаны на рис. 1, *a*. На рис. 1, *b* приведено SEM-изображение этого же образца после отжига на воздухе при 1300°C в течение 30 min. Видно, что порошок высокодисперсный, с размерами частиц менее 2  $\mu$ m, которые состоят из более мелких (~ 100 nm) частиц. Аналогичные результаты были получены при синтезе с использованием растворов с мочевиной, поэтому они не показаны.

Рентгенограммы образцов, подвергнутых изохронному (30 min) отжигу в интервале температур от 800 до 1550°C, показаны на рис. 2. Во всех экспериментах по отжигу скорость нагрева составляла 10°C в min. Широкие пики на рентгенограмме образца сразу после синтеза (нижняя кривая на рис. 2) указывают, что оксиды, образующиеся в результате пиролиза нитратов, присутствуют в синтезированных образцах в нанокристаллическом или аморфном состоянии. Гексагональная решетка оксида иттрия-алюминия  $YAlO_3$  формируется



**Рис. 2.** Рентгенограммы образцов, полученных пиролизом при 800°C с последующим отжигом на воздухе в течение 30 min при температурах до 1550°C.

при температуре отжига 900°C (рис. 2), рентгенограмма согласуется с эталоном для YAIO<sub>3</sub> (PDF Card № 00-054-0621).

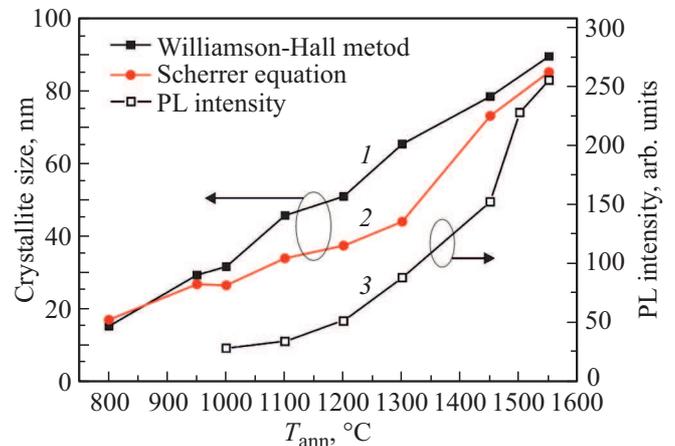
Поскольку оксид церия имеет высокую температуру плавления, существенной проблемой является предотвращение образования крупных частиц фазы CeO<sub>2</sub>. В противном случае концентрация примесных атомов Ce<sup>3+</sup>, растворенных в матрице YAG, будет низкой, и, соответственно, интенсивность ФЛ будет слабой.

Слабые пики кубического граната Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (PDF Card № 00-033-0040) появляются уже после отжига при 900°C. Фаза граната становится доминирующей в образцах, отожженных выше 1000°C. Пики XRD при углах 16.8°, 44.8°, 49.6° и 57.9°, относящиеся к гексагональной фазе YAIO<sub>3</sub>, исчезают после отжига при 1000°C.

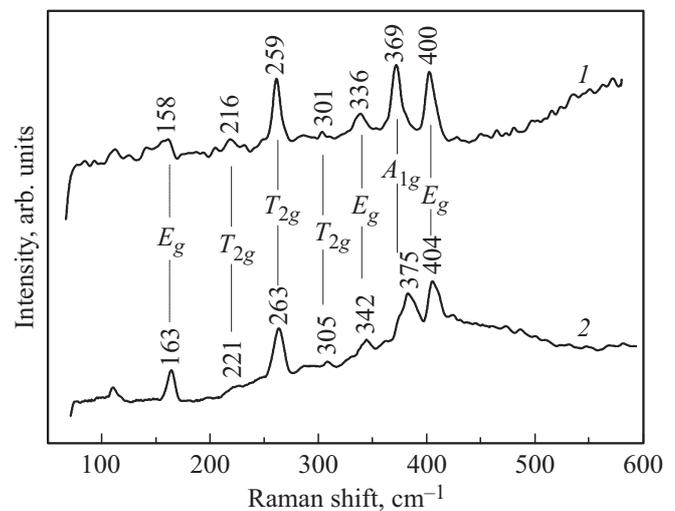
Средний размер кристаллитов *D* оценивали по рентгенограммам с использованием программы обработки дифрактометра MiniFlex Rigaku, основанной на методе Уильямсона–Холла [13]. Размер кристаллитов *D* оценивали также по формуле Шеррера  $D = (0.89\lambda) / (\beta \cos \theta)$ , где  $\beta$  — ширина на половине максимума (FWHM) линии дифракции рентгеновских лучей, наблюдаемая в экспериментальных рентгеновских спектрах при углах  $2\theta$ , и  $\lambda = 0.1540$  nm — длина волны  $K\alpha$  рентгеновской

линии меди. График значений *D*, которые были получены обоими способами, в зависимости от температуры изохронного (30 min) отжига показан на рис. 3. Можно видеть, что результаты, полученные обоими способами, дают схожие значения. Средний размер кристаллических зерен увеличивается от ~ 15 nm до ~ 90 nm с увеличением температуры отжига от 800 до 1550°C. В то же время деформация решетки уменьшалась с 0.26% до 0.04%.

На рис. 4 показаны спектры комбинационного рассеяния эталонного образца - промышленного люминофора YAG:Ce<sup>3+</sup>, синтезированного в НПО „Платан“ (Фрязино, Московская обл., Россия), который в дальнейшем будет называться Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup> (спектр 1) и порошка, полученного пиролизом раствора с лимонной кислотой и последующим отжигом при 1550°C в течение 30 min.



**Рис. 3.** Средний размер кристаллитов для образцов YAG, определенный по данным XRD: (1) метод Уильямсона–Холла, (2) формула Шеррера; кривая (3) — зависимость интенсивности ФЛ от температуры отжига для тех же образцов.



**Рис. 4.** Спектры комбинационного рассеяния образца Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup> (1) и образца, синтезированного при 800°C с последующим отжигом при 1550°C в течение 30 min (2).

Все наблюдаемые полосы при 163, 218, 263, 342, 375, 404  $cm^{-1}$  характерны для YAG. Их можно сравнить с известными рамановскими полосами YAG при 160, 218, 259, 340, 371, 401  $cm^{-1}$  [14], положения рамановских полос мало отличаются от случая монокристаллических образцов.

Таким образом, высокодисперсные однофазные порошки YAG могут быть получены при кратковременном ( $\sim 30$  min) отжиге при температуре выше  $1000^\circ C$ . Наличие одной фазы в образцах YAG:Ce<sup>3+</sup> является необходимым условием для достижения высокой эффективности ФЛ [1]. Помимо высокой кристалличности, также важно поддерживать концентрацию примеси церия Ce<sup>3+</sup> на оптимальном уровне и предотвращать образование фазы оксида церия.

Фотолюминесцентные свойства образцов YAG:Ce<sup>3+</sup> исследовали в зависимости от концентрации лимонной кислоты или мочевины в рабочем растворе и температуры последующей термообработки. Было обнаружено, что высокая интенсивность ФЛ в однофазных образцах YAG достигается только в узком диапазоне концентраций рабочего раствора. Азотная кислота, образующаяся в процессе пиролиза, снижает концентрацию церия из-за кислотного травления образца. Присутствие кислоты также уменьшает размер кристаллитов, что препятствует достижению интенсивной ФЛ.

Следует отметить, что при добавлении мочевины и лимонной кислоты в стехиометрических количествах, соответствующих реакциям (1) и (2), интенсивность ФЛ после отжига оставалась невысокой, и значительный рост интенсивности ФЛ наблюдался с увеличением концентрации лимонной кислоты (или мочевины). Максимальная интенсивность ФЛ достигалась, когда уровень лимонной кислоты или мочевины превышал стехиометрическое количество в три раза. Дальнейшее увеличение количества мочевины или лимонной кислоты в рабочем растворе приводило к получению мелких кристаллитов YAG и вызывало снижение интенсивности ФЛ. По этой же причине низкая интенсивность ФЛ наблюдалась при использовании раствора с концентрацией по иттрию менее 0.1 M.

На рис. 3 (кривая 3) показана зависимость интенсивности ФЛ от температуры отжига для образцов, выращенных с использованием рабочего раствора с 3-кратным избытком над стехиометрическим количеством лимонной кислоты. Заметная ФЛ появлялась только после отжига  $1000^\circ C$ , когда оксид YAlO<sub>3</sub> исчезает, а фаза граната YAG становится доминирующей (рис. 2). Из рис. 3 видно, что интенсивность ФЛ увеличивается в диапазоне температур отжига от 1000 до  $1550^\circ C$  одновременно с увеличением размера кристаллитов.

Образцы, полученные после синтеза с использованием лимонной кислоты, представляли собой черный порошок из-за присутствия небольшого количества углеродной сажи, в то время как после синтеза с использованием мочевины порошок был белым. После высокотемпературного отжига интенсивность ФЛ в образцах, полу-

ченных с лимонной кислотой, всегда была значительно выше, чем в образцах, синтезированных с мочевиной. Это может быть связано с тем, что наличие сажи на поверхности частиц блокирует агломерацию церия в фазу оксида церия вследствие создания восстановительных условий, тем самым поддерживая концентрацию растворенного церия в образцах YAG.

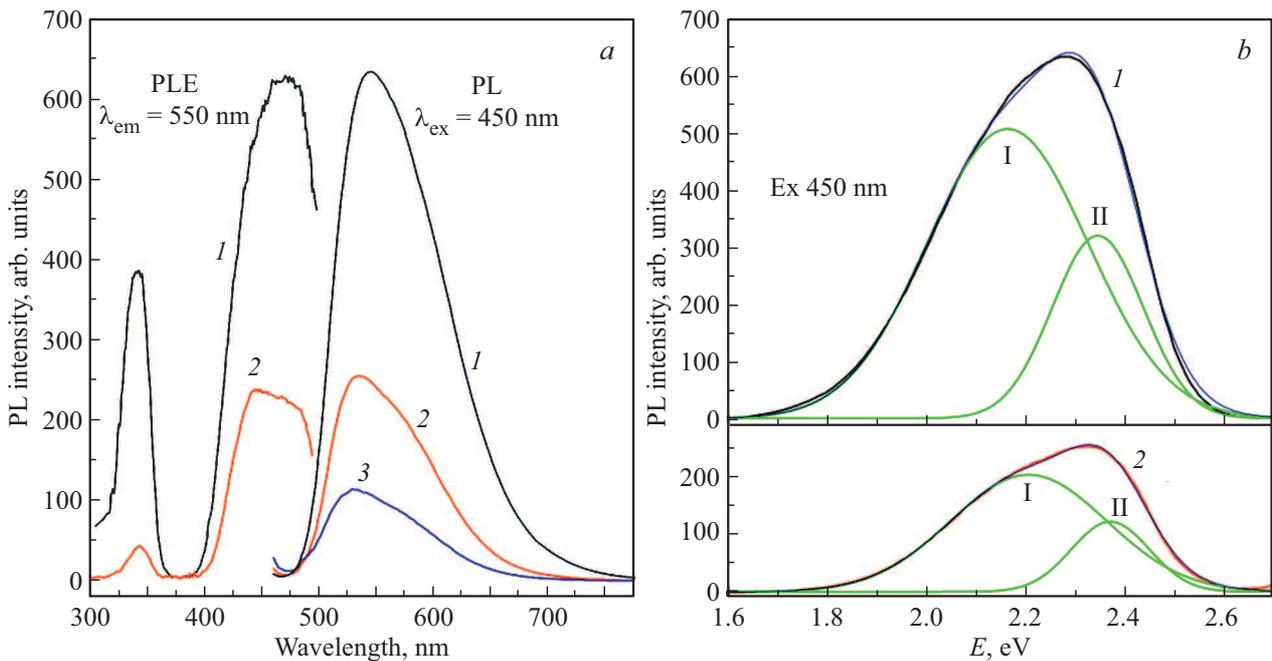
На рис. 5, а показано сравнение спектров ФЛ образца люминофора Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup> (спектр 1) и образцов YAG:Ce<sup>3+</sup>, синтезированных из растворов с лимонной кислотой (спектр 2) и мочевиной (спектр 3) путем пиролиза при  $800^\circ C$ , с последующим отжигом на воздухе при  $1550^\circ C$  в течение 30 min. Энергия максимума полосы ФЛ хорошо совпадает с известными литературными данными для YAG:Ce<sup>3+</sup> [5,15,16]. Спектры возбуждения ФЛ состоят из двух полос с пиками при  $\sim 340$  nm и 450 nm (рис. 5, а), что характерно для YAG:Ce<sup>3+</sup>.

Полученный люминофор YAG:Ce<sup>3+</sup> после отжига при  $1550^\circ C$  представлял собой желтый порошок; его цвет был чуть менее интенсивным, чем контрольного образца Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup>, а интегральная интенсивность ФЛ образца составила  $(40 \pm 2)\%$  от интенсивности ФЛ контрольного образца Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup>.

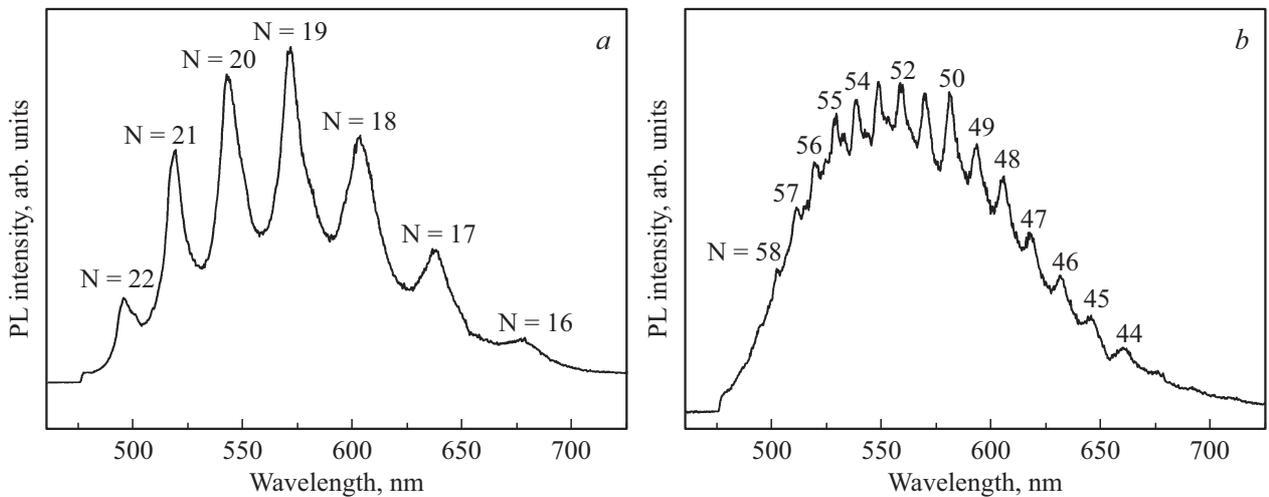
На рис. 5, б показано разложение спектров 1 и 2 из рис. 5, а на две гауссовы составляющие. Спектр ФЛ образца Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup> состоит из пиков при 530 nm (пик I) и 574 nm (пик II), спектр образца YAG:Ce<sup>3+</sup> состоит из пиков при 524 nm (I) и 563 nm (II). Наличие двух пиков характерно для  $5d^1-4f^1$  ( $^2F_{5/2}$ ) и  $5d^1-4f^1$  ( $^2F_{7/2}$ ) переходов иона Ce<sup>3+</sup>. Расстояние между компонентами в спектре ФЛ также соответствует литературным данным [17] о переходах  $4f^05d^1 \rightarrow 4f^1$  иона Ce<sup>3+</sup>. Конфигурация основного состояния  $4f^1$  разделена на два подуровня,  $^2F_{5/2}$  и  $^2F_{7/2}$ , и эти два подуровня разделены примерно на  $2000\text{ cm}^{-1}$  благодаря спин-орбитальной связи [18]. В нашем случае расстояние между полосами ФЛ с максимумами при 2.20 eV и 2.37 eV составляет  $\sim 1400\text{ cm}^{-1}$ , что довольно близко к литературным данным. Соответственно при возбуждении 450 nm образец Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup> (рис. 5, а, спектр 1) показал координаты цветности (CIE)  $X = 0.419$ ,  $Y = 0.553$ ,  $Z = 0.028$ , а образец YAG:Ce<sup>3+</sup> (рис. 5, а, спектр 2) близкие значения  $X = 0.391$ ,  $Y = 0.570$ ,  $Z = 0.039$ .

Синтезированные люминофоры также исследовались методом микро-фотолюминесценции ( $\mu$ -PL) при комнатной температуре. Положение пика  $\mu$ -PL практически совпадает с положением спектра ФЛ, возбужденного при 450 nm. Однако некоторые области образца демонстрируют модуляцию спектра  $\mu$ -PL (рис. 6). Эти колебания могут быть вызваны либо оптической интерференцией в резонаторе Фабри–Перо (FP), либо модами шепчущей галереи (whispering gallery modes WGM) [19,20].

Используя простое соотношение для резонансных длин волн:  $2nL \cos \theta = N\lambda$ , где  $n$  — показатель преломления,  $L$  — длина резонатора,  $\theta$  — угол падения,  $N$  — целое число,  $\lambda$  — длина волны, мы можем оценить



**Рис. 5.** *a* — спектры возбуждения (PLE) и спектры ФЛ образца люминофора Ref-YAG:Ce<sup>3+</sup> (кривая 1) и образцов, полученных пиролизом раствора предшественника с лимонной кислотой (кривые 2) и мочевиной (3); *b* — разложение спектров ФЛ, показанных на рис. (а), на две гауссовские полосы, по оси *x* отложена энергия.



**Рис. 6.** Спектры  $\mu$ -ФЛ малых (*a*) и крупных (*b*) частиц YAG Ce<sup>3+</sup>.

размер  $L$  структур, в которых возникает интерференция. Превосходное совпадение положений максимумов в спектрах  $\mu$ -PL с приведенной выше формулой было получено при  $n = 1.886$ ,  $L = 2.92 \mu\text{m}$  и  $N = 16-22$  для спектра (*a*) и  $L = 7.80 \mu\text{m}$  и  $N = 44 \pm 58$  для спектра (*b*) на рис. 6.

Согласно SEM-анализу, частицы с размерами более  $2-4 \mu\text{m}$  не наблюдаются; кроме того, размер области возбуждения составляет около  $2 \mu\text{m}$ . Следовательно, наблюдаемые спектры  $\mu$ -PL на рис. 6, *a* и *b* нельзя объяснить резонансом FP и необходимо отнести к WGM для

круглых частиц со средним диаметром  $\sim 0.9$  и  $\sim 2.5 \mu\text{m}$  соответственно. Эти значения хорошо согласуются с наблюдаемыми размерами частиц порошка YAG:Ce<sup>3+</sup>. Таким образом, наблюдаемая модуляция спектра  $\mu$ -PL в синтезированном люминофоре может быть объяснена круговыми резонансами WGM, и, насколько нам известно, WGM ранее не наблюдались в микрокристаллах YAG:Ce<sup>3+</sup>. Можно заключить, что синтезированные образцы имеют высокие оптические характеристики. Эффект интерференции WGM может быть полезен для различных применений, включая сенсористику и фотонику,

оптические микрорезонаторы WGM имеют большие перспективы для использования в оптоэлектронных и биологических поверхностных оптических сенсорах [20].

#### 4. Заключение

Для синтеза высокодисперсного порошка  $YAG : Ce^{3+}$  с интенсивной фотолюминесценцией использован простой метод пиролиза аэрозоля, определены оптимальные условия для сохранения концентрации церия, достижения высокой кристалличности при кратковременных отжигах и получения интенсивной ФЛ. Материал после синтеза при  $800^\circ C$  имеет аморфную структуру, при отжиге сначала формируется фаза оксида  $YAlO_3$ , при температурах выше  $1000^\circ C$  формируется структура граната  $Y_3Al_5O_{12}$ . Обнаружена близкая к линейной зависимость между интенсивностью ФЛ и размером кристаллитов. Интенсивность спектров ФЛ  $Y_3Al_5O_{12}$  зависит от общей концентрации рабочего раствора и количества лимонной кислоты (или мочевины). При использовании лимонной кислоты в образцах после синтеза присутствует углеродная сажа, которая создает восстановительные условия при последующем отжиге и предотвращает потерю церия. Наблюдение WGM свидетельствует о высоком оптическом качестве синтезированного материала.

#### Финансирование работы

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Министерства образования и науки Республики Казахстан, грант № AP05130243.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] R. Zhang, H. Lin, Y. Yu, D. Chen, J. Xu, Y. Wang. *Laser Photon. Rev.* **8**, 15 (2013).
- [2] S. Nakamura. *Angewandte Chem. Int. Edition* **54**, 7770 (2015).
- [3] Y. Hwa Kim, N.S.M. Viswanath, S. Unithrattil, H.J. Kim, W.B. Im. *ECS J. of Solid State Sci. Technol.* **7**, R3134 (2018).
- [4] Y.-C. Lin, M. Karlsson, M. Bettinelli. *Top. Current Chem.* **21**, 374 (2016).
- [5] G. He, L. Mei, L. Wang, G. Liu, J. Li. *Cryst. Growth Des.* **11**, 5355 (2011).
- [6] A. Purwanto, W.-N. Wang, T. Ogi, I.W. Lenggoro, E. Tanabe, K. Okuyama. *J. Alloys Comp.* **463**, 350 (2008).
- [7] S. Murai, K. Fujita, K. Iwata, K. Tanaka. *J. Phys. Chem. C* **115**, 17676 (2011).
- [8] F.A. Selim, A. Khamehchi, D. Winarski, S. Agarwal. *Opt. Mater. Express* **6**, 3704 (2016).
- [9] H. Koizumi, J. Watabe, S. Sugiyama, H. Hirabayashi, Y. Tokuno, H. Wada, T. Homma. *ECS J. Solid State Sci. Technol.* **7**, R63 (2018).
- [10] P. Ramanujam, B. Vaidhyanathan, J. Binnera, S. Ghanizadeh, Z. Zhou, C. Spacie. *Am. Ceram. Soc.* **101**, 4864 (2018).
- [11] Г.П. Шевченко, Е.В. Третьяк, С.К. Рахманов, Г.Е. Малашкевич. *Журн. физ. химии* **87**, 8, 1410 (2013).
- [12] L. Mancic, K. Marinkovic, B.A. Marinkovic, M. Dramicanin, O. Milosevic. *J. Eur. Ceram. Soc.* **30**, 577 (2010).
- [13] G. Williamson, W. Hall. *Acta Metallurgica* **1**, 22 (1953).
- [14] A. Lukowiak, R.J. Wiglusz, M. Maczka, P. Gluchowski, W. Strek. *Chem. Phys. Lett.* **494**, 279 (2010).
- [15] В.М. Лисицын, И.П. Сошин, Цзюй Янян, С.А. Степанов, Л.А. Лисицына, А.Т. Тулегенова, Х.А. Абдуллин. *Изв. вузов. Физика* **60**, 5, 106 (2017).
- [16] V.M. Lisitsyn, S.A. Stepanov, H.A. Abdullin, A.T. Tulegenova, Yangyang Ju, V. Kolomin. *Key Eng. Mater.* **712**, 362 (2016).
- [17] A. B. Munoz-Garcia, Z. Barandiaran, L. Seijo. *J. Mater. Chem.* **22**, 19888 (2012).
- [18] G. Blasse, A. Bril. *Appl. Phys. Lett.* **11**, 53 (1967).
- [19] B. Sotillo, P. Fenandez, J. Piqueras. *J. Mater. Chem. C* **3**, 10981 (2015).
- [20] С.А. Грудинкин, А.А. Донцов, Н.А. Феоктистов, М.А. Баранов, К.В. Богданов, Н.С. Аверкиев, В.Г. Голубев. *ФТП* **49**, 1415 (2015).

Редактор Т.Н. Василевская