

06

## Новые сцинтилляционные керамики для детекторов рентгеновского, $\gamma$ - и нейтронного излучений

© М.В. Коржик,<sup>1,2</sup> В.М. Ретивов,<sup>2</sup> В.В. Дубов,<sup>2</sup> Л.В. Ермакова,<sup>2</sup> В.К. Иванов,<sup>3</sup> П.В. Карпюк,<sup>2</sup> И.А. Лагуцкий,<sup>4</sup> О.Ю. Коваль,<sup>2</sup> И.Ю. Комендо,<sup>2</sup> Д.Е. Лелекова,<sup>2</sup> В.А. Мечинский,<sup>1,2</sup> В.А. Пустоваров,<sup>5</sup> В.Г. Смыслова,<sup>2</sup> П.С. Соколов,<sup>2</sup> Д.Н. Таврунов,<sup>5</sup> А.А. Федоров<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>НИИ ядерных проблем Белорусского государственного университета, 220030 Минск, Беларусь

<sup>2</sup>НИЦ „Курчатовский институт“, 123182 Москва, Россия

<sup>3</sup>Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова, 119071 Москва, Россия

<sup>4</sup>ОАО АТОМТЕХ, 220005 Минск, Беларусь

<sup>5</sup>Уральский федеральный университет, 620075 Екатеринбург, Россия  
e-mail: korjik1064@tut.by

Поступило в Редакцию 11 сентября 2024 г.

В окончательной редакции 1 ноября 2024 г.

Принято к публикации 2 ноября 2024 г.

Описаны методы получения и сцинтилляционные свойства прозрачных керамик структурного типа граната состава  $(\text{Gd,Me})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$  ( $\text{Me} = \text{Y, Lu}$ ), активированных ионами редкоземельных элементов Ce, Pr, Tb. Показано, что внесение композиционного беспорядка в катионную подрешетку соединений позволяет существенно улучшить их сцинтилляционные свойства. По совокупности параметров сцинтилляторы  $(\text{Gd, Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce, Tb}$  и  $(\text{Gd, Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce, Pr}$  превосходят  $\text{Gd}_2\text{O}_3:\text{Tb, Ce}$ ,  $(\text{Y, Gd})_2\text{O}_3:\text{Pr}$  и  $\text{CsI:Tl}$  для применения в компьютерных томографах и рентгеновских сканерах. Сцинтилляторы  $(\text{Gd, Y, Lu})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce, Mg}$  обеспечивают временное разрешение совпадений аннигиляционных  $\gamma$ -квантов (511 keV) менее 100 ps, что делает их востребованными для создания позитронно-эмиссионных томографов с возможностью дополнительной селекции по времени пролета. Наличие ионов Gd в соединениях позволяет создавать нейтронные счетчики с детекторными элементами как в виде композитов, так и в виде прозрачных элементов для регистрации нейтронов в широком диапазоне спектра: от тепловых до десятков MeV с использованием как амплитудной селекции, так и дискриминации по форме импульса.

**Ключевые слова:** сцинтиллятор, прозрачная керамика, гранат, выход сцинтилляций, рентгеновский сканер, позитронный эмиссионный томограф, нейтрон, редкоземельные ионы.

DOI: 10.61011/JTF.2024.12.59276.271-24

### Введение

Неорганические сцинтилляционные материалы являются надежным инструментом для измерения ионизирующего излучения. Они применяются в широком круге сканеров, использующих проникающие свойства излучения, а также в научных исследованиях: от измерения свойств элементарных частиц до изучения элементов масштаба вселенной [1]. Развитие и внедрение таких материалов заняло немногим более ста лет, при этом был проделан путь от разработки кристаллических соединений с простым двухионным набором в решетке к соединениям сложного катионного и анионного состава. Качественные многоионные кристаллические соединения достаточно сложно получать методом вытягивания из расплава вследствие разницы насыщенных паров в ростовой камере различных компонент, а также градиента концентраций, входящих в решетку катионов вдоль

оси выращивания. Альтернативным способом получения кристаллических сцинтилляторов является получение керамики безрасплавным методом. Этот метод эффективен для соединений с кубической пространственной группой симметрии, что сужает круг потенциально пригодных соединений. Варьирование состава катионов в матрице позволяет изменять чувствительность материала к различным видам ионизирующего излучения. Таким образом становится возможным создание набора сцинтилляционных материалов в рамках одного структурного типа, что позволяет унифицировать технологию и существенно сократить издержки при промышленном освоении.

Наиболее подходящими для этой цели являются кристаллические материалы структурного типа граната на основе трехвалентных катионов [2]. Такие материалы на основе иттрия и редкоземельных ионов (РЗИ) являются, как правило, радиационно-стойкими [3–5]. Они образуют

ют многообразие твердых растворов при изовалентном замещении; в них возможно изовалентное и неизовалентное легирование примесными ионами. Комбинация этих свойств обуславливает возможность целевой подстройки и совершенствования свойств кристаллических соединений для использования в качестве сцинтилляционных материалов. В работах [6,7] проанализировано применение принципа усложнения состава катионной или анионной подрешеток в кристаллических соединениях, используемых для детектирования ионизирующего излучения, для улучшения, прежде всего, выхода сцинтилляций.

В работе [8] рассмотрено влияние различия ионных потенциалов смешиваемых в катионной решетке атомов, которое приводит к нарушению периодичности эффективного потенциала в твердом растворе и вызывает его флуктуации. Этот эффект вызывает рассеяние одноэлектронных состояний. Флуктуации эффективного потенциала, обусловленные беспорядком замещения, описаны с помощью метода псевдопотенциала [9]. Композиционное разупорядочение не приводит к изменению структурного типа соединения либо понижению симметрии кристаллической решетки, т.е. сохраняется исходная кристаллическая решетка, т.е. сохраняется исходная кристаллическая решетка. При замещении катионов за сохранение дальнего порядка в расположении ионов в решетке ответственна анионная подрешетка. Однако, как показано в работах [10,11], внесение композиционного беспорядка в катионную подрешетку приводит к существенному изменению в распределении плотности электронных состояний вблизи запрещенной зоны. В большинстве случаев при взаимодействии ионизирующего излучения с веществом сцинтиллятора происходит ионизация внутренних оболочек атомов, составляющих соединение. Образуется случайный трек неравновесных носителей заряда. При этом пространственное распределение концентрации термализованных неравновесных носителей определяет эффективность передачи энергии электронных возбуждений ансамблю излучательных центров. Поскольку возбуждение люминесцентных центров в рассматриваемых соединениях, как правило, включает стадию образования экситонных состояний, очевидно, что конечный выход сцинтилляции определяется концентрацией экситонов в термализованном треке. При этом случайная модуляция дна запрещенной зоны приводит к более эффективной термализации неравновесных носителей, прежде всего, электронов. Это сокращает объем трека после термализации и, как следствие, повышает вероятность образования экситонов. Поэтому конструирование материала на атомарном уровне для достижения параметров трека, способствующих максимально эффективному образованию экситонных состояний неравновесных носителей, стало одним из приоритетных направлений дальнейших разработок.

Среди многообразия оксидных соединений со структурным типом граната можно выделить соединения на основе гадолиния, использование которых существенно

расширяет возможности управления сцинтилляционными свойствами, а также чувствительностью к различным видам ионизирующего излучения [12–17].

Оксидные соединения на основе  $Gd^{3+}$  имеют многочисленные  $f$ -уровни ( ${}^6P$ ,  ${}^6I$ ,  ${}^6D$ ) в запрещенной зоне, создающие подзоны. Более того, из расширенной диаграммы электронных состояний трехвалентных РЗИ [18] следует, что многочисленные  $f$ -уровни ионов  $Gd^{3+}$  в диапазоне более  $40\,000\text{ см}^{-1}$  создают цепочку последовательных процессов, включающих эффективный захват неравновесных носителей ионами  $Gd$  и внутрицентровую релаксацию в низшие состояния  ${}^6P$ ,  ${}^6I$ , при этом обмен с решеткой происходит как за счет автолокализованных экситонов (АЛЭ), энергия которых несколько меньше энергии запрещенной зоны, так и за счет экситонов Френкеля (ЭФ), локализованных в подзонах  ${}^6P$ ,  ${}^6I$ . Увеличение композиционного разупорядочения вследствие разбавления гадолиниевой подрешетки, т.е. переход от тройных к четвертым и далее пятикатионным соединениям, неизбежно приводит к нарушению целостности гадолиниевой подрешетки. Обычно взаимодействие возбужденной конфигурации  $5d^04f^7$  ионов  $Gd^{3+}$  и основной конфигурации  $5d^04f^1$  активатора  $Ce^{3+}$  описывается переносом энергии диполь-дипольного взаимодействия. В то же время прыжковая диффузия по подрешетке гадолиния обусловлена диполь-дипольным переносом между  $f$ -состояниями. Таким образом, перенос энергии представляет собой контролируемый диффузией диполь-дипольный перенос. В системе с нарушенной периодичностью в гадолиниевой подсистеме также возрастает роль обменного взаимодействия, поэтому разбавление гадолиниевой подрешетки позволяет управлять как выходом сцинтилляций, так и их кинетикой [19].

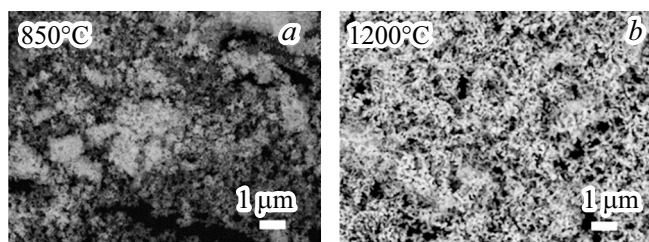
В настоящей работе мы сфокусировались на демонстрации возможностей управления сцинтилляционными параметрами соединений  $(Gd,Me)_3Al_2Ga_3O_{12}$  ( $Me = Y, Lu$ ), активированных ионами  $Ce$ ,  $Pr$ ,  $Tb$ . Все соединения получены в виде прозрачной керамики, перспективной для создания детекторных элементов, поэтому лабораторная технология ее получения может в дальнейшем масштабироваться для оснащения отечественного сканерного оборудования.

## 1. Получение прозрачной керамики соединений со структурой граната

### 1.1. Получение прекурсоров

Производство керамики включает несколько последовательных стадий, которые могут быть обобщены в три: производство прекурсора в виде порошка, его уплотнение и спекание.

Установлено, что для создания прозрачной керамики сложного состава оптимальным является метод соосаждения прекурсора. Распространение получения прекурсоров гранатов в виде порошков также получил



**Рис. 1.** СЭМ изображения в режиме обратно-рассеянных электронов нанопорошков GYAGG:Ce, прокаленных при температурах термообработки 850 (a) и 1200°C (b).

твердофазный синтез [20–22]. Для алюминий-галлиевых гранатов в процессе приготовления возникает нарушение стехиометрии соединения из-за наличия в смеси легко испаряемого оксида галлия [23], поэтому также используют методы с коротким временем нагрева, такие, как распылительный пиролиз [24,25]. Недостатком пиролитического метода является получение частиц правильной сферической формы с узким распределением по размерам, иногда полых внутри, что требует непрерывного приложения давления к прессовкам из порошков в процессе спекания и делает оборудование дорогим в эксплуатации. Золь-гель метод, включая его разновидность в виде метода Печчини, а также метод самораспространяющегося высокотемпературного синтеза являются простыми в реализации, но трудно масштабируемыми и малоподходящими для получения гранатов по причине образования в них прочных агломератов частиц [26–28].

Достоинствами метода соосаждения являются легкая масштабируемость и высокая химическая однородность продукта [29–32]. На рис. 1 приведены изображения сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) нанопорошка GYAGG при температурах обработки 850 и 1200°C в течение 2 h. Не наблюдается агломерации порошков. Таким образом, метод соосаждения позволяет синтезировать слабоагломерированные порошки, структура которых сохраняется в широком интервале температур. Такие порошки достаточно быстро размалываются до фракций, необходимых для получения заготовок для дальнейшего спекания.

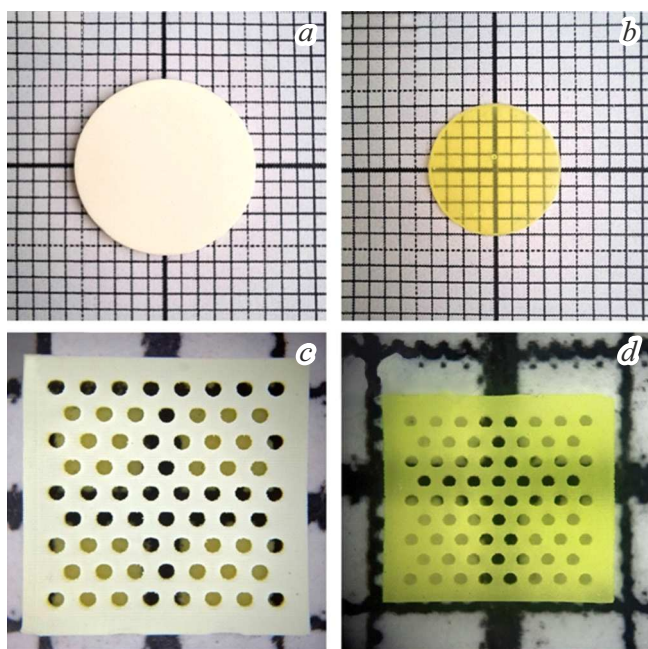
Соосаждение позволяет получать порошки граната с первичными частицами средних размеров около 50 nm и удельной поверхностью 60–70 m<sup>2</sup>/g. Наличие множества контактов между ними обеспечивает высокую спекающую способность, благодаря чему возможно получение прозрачной керамики без приложения давления.

## 1.2. Формование порошка в заготовки для спекания

В керамической технологии уплотнение порошка является важнейшей операцией. На этой стадии задается форма и габариты будущего изделия. Физические

размеры сырца обычно больше, чем размеры создаваемой керамики. Механические свойства сырца должны позволять проводить с ним манипуляции по перемещению в пространстве для последующих технологических процессов. Независимо от использованного метода формования, сырец обычно представляет собой композит, состоящий из органического связующего (фиксатора формы) и целевой дисперсной минеральной части (неорганического порошка). Для равномерной и бездеформационной осадки в ходе высокотемпературного спекания плотной керамики крайне важно, чтобы сырец был однородным по плотности. Однородная структура сырца задается на стадии приготовления жидкого шликера (суспензии), состоящего из неорганического порошка, основной среды и различных функциональных добавок, которые стабилизируют суспензию и минимизируют процессы седиментации и агрегации частиц. В традиционной керамической технологии часто используют литье горячего термопластичного шликера в холодные (обычно водоохлаждаемые) металлические формы. Несмотря на неоспоримые преимущества такого способа создания, а именно скорость и высокая производительность, существует критический недостаток: для каждого прототипа изделия обычно требуется своя уникальная литьевая форма, иногда даже одноразовая, с последующей сложной механической доработкой как сырца, так и финальной керамики.

Для уплотнения прекурсоров использовали традиционный метод одноосного прессования гидравлическим прессом с давлением 64 МПа. Также использовался высокотехнологичный способ изготовления сырцов для получения прозрачной керамики соединений со структурой граната, которым является трехмерная печать [33–38]. Одним из самых простых, относительно дешевых и доступных в реализации методов является стереолитографическая 3D-печать или печать в ванне в различных технических реализациях. Стоит подчеркнуть, что для изготовления требуемого сырца и последующего керамического изделия архитектуры любой сложности процесс послойной фотополимеризации может быть реализован в одной и той же ванне. Доступность формирования всевозможных геометрических форм создаваемых элементов достигается за счет полимеризации суспензии при локальной засветке ультрафиолетовым источником излучения или фотопротектором [34–37]. Особенностью и преимуществом стереолитографической 3D-печати является использование широкодоступных акрилатных мономеров и реологических или диспергирующих добавок, производимых сотнями тонн для современной лакокрасочной промышленности, однако при производстве передовой функциональной керамики высокой чистоты и оптического качества, в том числе и сложных оксидов со структурой граната, с использованием стереолитографии нужно учитывать, что реологические добавки могут привносить вредные примеси, например, фосфор. Такие примеси оказывают негативное влияние на прозрачность и основные свойства получаемой керамики [37,38].

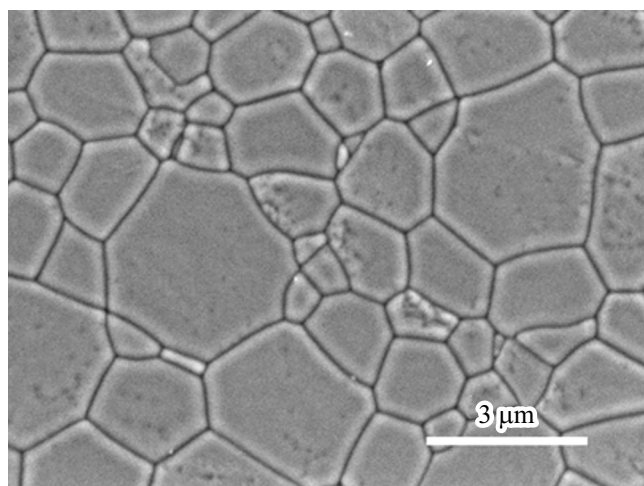


**Рис. 2.** Типичный внешний вид сырцов GYAGG:Ce после изготовления на 3D-принтере (*a, b*) и после выжигания из них связующего и высокотемпературного спекания (*c, d*) в плотную оксидную керамику.

Стереолитографическая 3D-печать позволяет получать керамику как простой, так и сложной формы. Образцы компактов, изготовленных с помощью печати и последующего отжига и спекания, представлены на рис. 2. Керамики сложной формы, в том числе и ажурной, могут использоваться для создания детекторов радиоактивных составляющих газов, жидкостей [34], а также мониторов пучков ускоренных заряженных частиц.

### 1.3. Спекание для получения прозрачной керамики соединений со структурным типом граната

Основными подходами к получению керамики высокой оптической прозрачности является контроль условий спекания и внесение специальных спекающих добавок. К условиям спекания относятся температура, продолжительность и атмосфера высокотемпературной обработки порошковых компактов. Температурный диапазон спекания керамики соединений граната, в зависимости от наличия в соединении галлия, был установлен в диапазоне от 1600 до 1800°C [39–41]. Для разработанных составов алюмо-галлиевых гранатов установлено, что для сырцов из соосажденных прекурсоров оптимальное значение температуры для получения прозрачной керамики трех- и более катионных соединений лежит вблизи 1700°C. При анализе СЭМ изображений среза керамики GYAGG:Ce, полученной при спекании при данной температуре, одно из которых представлено на рис. 3, продемонстрирован практически полный выход



**Рис. 3.** СЭМ изображение керамики GYAGG:Ce, полученной спеканием при температуре 1700°C в течение 2 h в атмосфере кислорода.

пор, а средний размер зерна, определенный по распределению размеров зерен в срезе, составляет 1.4  $\mu\text{m}$ .

Для частиц с высокоразвитой удельной поверхностью, используемых при получении керамики, не установлена устойчивая корреляция зависимости прозрачности керамики от времени спекания.

Для рассматриваемых соединений спекание в атмосфере кислорода является оптимальным. Это подтверждено также в работах других авторов [42,43]. На рис. 4 приведены образцы прозрачных керамик граната различных составов, полученные при спекании в атмосфере кислорода.

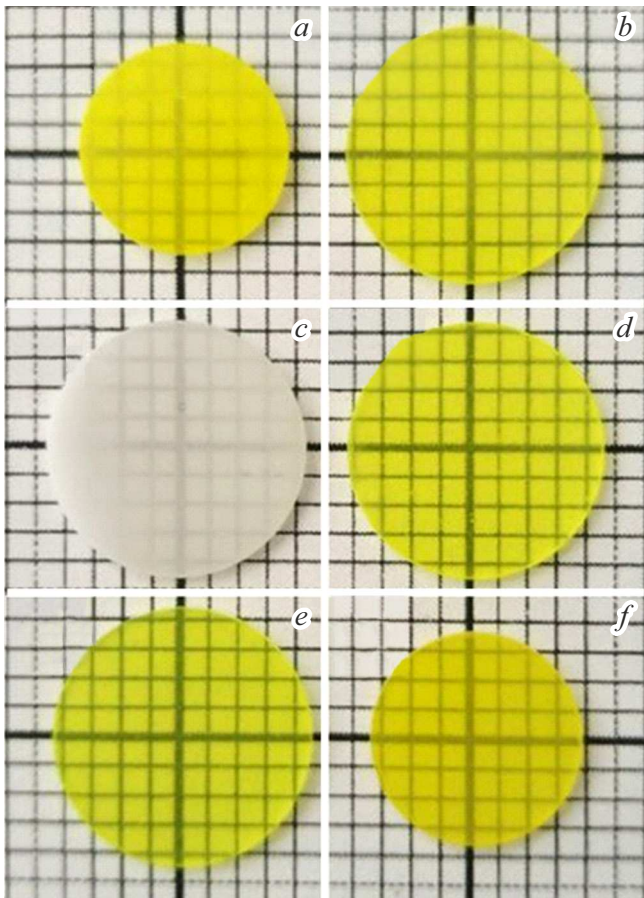
Разработанная технология позволяет получать прозрачную керамику различных соединений структурного типа граната, содержащих вплоть до пяти катионов в кристаллической решетке.

## 2. Функциональные свойства керамических сцинтилляторов

### 2.1. Измерение параметров сцинтилляционных керамик

Измерения параметров сцинтилляций разработанных образцов керамики было произведено с помощью различных источников ионизирующего излучения ( $\alpha$ -,  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучения, ускоренных электронов) и фотоприемников [17,44–47]. При измерениях чувствительности и эффективности регистрации нейтронов была использована сертифицированная нейтронная дозиметрическая линейка Атомтех АТ140 на основе источника  $^{238}\text{Pu-Be}$ , а также пучок монохроматических нейтронов с длиной волны 2.4 Å (14 meV) нейтронного источника НИЦ „Курчатовский институт“.





**Рис. 4.** Фотографии образцов керамики составов: *a* —  $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ , *b* —  $(\text{Gd,Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ , *c* —  $(\text{Gd,Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Tb}$ , *d* —  $(\text{Gd,Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce,Tb}$ , *e* —  $(\text{Gd,Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce,Pr}$ , *f* —  $(\text{Gd,Y,Lu})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce,Mg}$  после отжига без дополнительной полировки поверхностей.

## 2.2. Материалы для рентгеновских и позитронных эмиссионных сканеров

Получение керамик в прозрачном виде существенно расширяет область их применения в детекторах ионизирующего излучения. Прежде всего, отметим массово применяемые системы рентгенографического контроля (рентгеновские сканеры), которые широко используются для медицинской диагностики и бесконтактного досмотра человека, грузов, дефектоскопии и т.д.

При диагностике заболеваний или сканировании человека использование таких приборов сопряжено с облучением ионизирующим излучением. Предельно безопасной дозой облучения для человека считается 100 мSv в год. Современные системы обычно подвергают человека эффективной дозе 0.25  $\mu\text{Sv}$  [48] за сеанс и, следовательно, исключают рутинный скрининг более одного раза в день. Поэтому разработка систем рентгенографического контроля с низкими дозами, позволяющими безопасно проводить проверки человека не менее 1000 раз в

год, является наиболее перспективной стратегией для личного досмотра.

Выбор детекторных материалов обусловлен типом рентгеновского источника и способом обработки сигналов в рентгеновских сканерах (РС) либо компьютерных томографах (КТ). Отметим материалы  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Tb}$ ,  $(\text{Y,Gd})_2\text{O}_2\text{S}:\text{Pr}$ ,  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Tb}$ , Ce, используемые в большинстве зарубежных КТ [49–51]. Широко используемыми являются детекторы интегрирования энергии (ДИЭ). При использовании сцинтилляторов в таких сканерах регистрируется ток фотоприемника, созданный потоком оптических фотонов, рожденных в сцинтилляторе. ДИЭ измеряют интегрированные по энергии сигналы поглощенных рентгеновских квантов, таким образом теряя всю зависящую от энергии информацию. Кроме того, в ДИЭ дополнительно интегрируется электронный шум, что приводит к снижению контрастности изображения. Дальнейшим развитием приборов с ДИЭ стали сканеры, использующие две энергии рентгеновского излучения, что потребовало двухслойных детекторов, оптимизированных на мягкий и более жесткий рентген. Для такого применения основными параметрами сцинтилляторов являются выход сцинтилляций и минимальный уровень фосфоресценции материала в высвечиваемой светосумме.

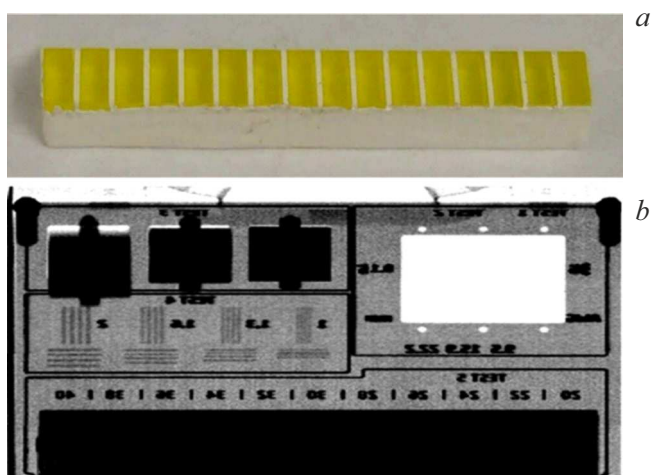
Дальнейшее развитие техники рентгеновских трубок и тяжелых полупроводниковых материалов сделало актуальным детектирование индивидуальных рентгеновских квантов (ДИК), что дает неоспоримые преимущества для медицинских и досмотровых систем [52,53], поскольку обеспечивает измерения в оптимальном по соотношению сигнал/шум импульсном режиме. В силу этого, известные образцы таких сканеров на основе полупроводниковых детекторов кадмий-цинк-теллура (CZT) превосходят традиционные КТ на основе ДИЭ по всем показателям: уменьшенной дозовой нагрузке на пациента, качеству изображения и контурной резкости мягких тканей и костей, шумам и наличию артефактов обработки изображений [54–56]. Вместе с тем ограниченная доступность CZT на рынке стимулировала интерес к использованию в ДИК сцинтилляционных счетчиков. Важными требованиями к детекторным элементам на принципе ДИК являются следующие: возможность создания пикселей с размером от  $0.5 \times 0.5$  до  $1 \times 1$  мм, максимальная скорость счета на пиксель от  $1 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  до  $5 - 7 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ , что принципиально технически достижимо с использованием разработанных сцинтилляционных материалов на основе современных полупроводниковых фотоприемников.

Сравнение параметров разработанных сцинтилляторов с используемыми в различных модификациях РС и КТ сканеров приведено в табл. 1, а на рис. 5 показаны линейный детекторный модуль из пикселей  $\text{GYAGG}:\text{Tb,Ce}$  и тестовое изображение, полученное с помощью детекторного модуля на основе четырех линейных элементов.

Видно, что материалы на основе керамик  $\text{GYAGG}:\text{Tb,Ce}$  [44] для создания детекторов, работающих

**Таблица 1.** Сравнение параметров используемых сцинтилляторов Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb, Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Pr,Ce,F CsI(Tl) с представленными в данной работе материалами для применения в рентгеновских сканерах и компьютерных томографах. Данные керамик семейства GOS приведены в [49]

Область применения	Сканеры с детекторами на основе ДИК			Сканеры с детекторами на основе ДИЭ			
	Material	GAGG:Ce	GYAGG:Ce	GYAGG:Tb,Ce	GYAGG:Pr,Ce	GOS:Pr,Ce,F	GOS:Tb
Форма материала	Монокристалл, керамика	Монокристалл, керамика	Монокристалл, керамика	Монокристалл, керамика	Керамика	Керамика	Монокристалл
Положение максимума люминесценции [nm]	520	520	546	530	520	546	550
Относительный световыход	0.7 (20°C) 0.9 (-25°C)	0.9 (20°C)	1.6 (20°C)	0.7	0.5	0.9	1
Константа затухания сцинтилляции [μs]	0.08	0.05	0.06 (40%) 2000 (60%)	0.08 (90%) 0.5 (10%)	3	3000	0.6
Фосфоресценция после 30 ms [%]	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	1.5
Прозрачность	Прозрачный	Прозрачный	Прозрачный	Прозрачный	Полупрозрачный	Полупрозрачный	Прозрачный
Плотность	6.68	5.86	5.86	5.86	7.34	7.34	4.53
Гигроскопичность	нет	нет	нет	нет	нет	нет	средняя



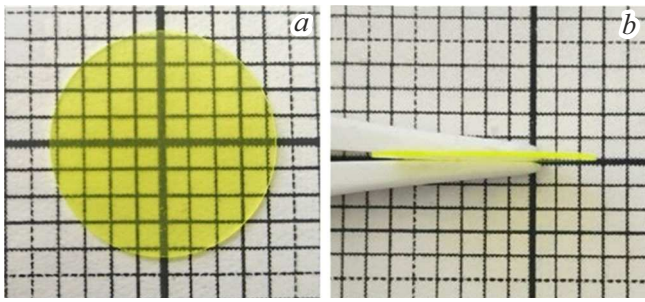
**Рис. 5.** Фотография линейного элемента 1x16 из керамики GYAGG:Tb,Ce для использования в детекторах интегрирования энергии поглощенных рентгеновских квантов в РС (a) и тестовое изображение, полученное в сканере с детекторным модулем, содержащим четыре элемента (b).

на принципе ДИЭ, обладают преимуществом по выходу сцинтилляций по сравнению с материалами

GOS:Tb, а GYAGG:Pr,Ce — в сравнении с GOS:Pr,Ce,F. Прозрачность созданной керамики предоставляет возможность использования более толстых слоев без значительной потери выхода сцинтилляций, что компенсирует меньшую поглощательную способность рентгеновского излучения в сравнении с оксисульфидом гадолиния. Для сканеров, работающих на принципе ДИК, разработанные материалы обеспечивают на порядок большие загрузки, чем полупроводниковые преобразователи CZT.

В низкоэнергетическом рентгеновском сканере возможно использование тонких пластин керамического сцинтиллятора. На рис. 6 приведен элемент керамики GYAGG:Tb,Ce толщиной 200 μm, который при измерении на установке в НИЦ „Курчатовский институт“ обеспечивает пространственное разрешение лучше 60 μm. Возможность изготовления тонких образцов подтверждает высокое качество керамики, выход годных элементов при механической обработке составляет более 80%.

Помимо СТ сканеров в современной медицинской диагностике получили распространение ПЭТ (позитронно-эмиссионных томографы) сканеры. В настоящее время в качестве детекторного материала в ПЭТ сканерах используются сцинтилляционные материалы, техника регистрации аннигиляционных γ-квантов (511 keV) до-



**Рис. 6.** Изображение керамического элемента GYAGG:Ce,Tb толщиной 200  $\mu\text{m}$  на плоской поверхности (a) и перпендикулярно ей (b).

статочно хорошо разработана на основе метода совпадений [57,58]. Подробно сцинтилляторы и их применение в устройствах медицинской диагностики описаны в работе [1].

Высокая тормозная способность, высокое энергетическое разрешение, низкий уровень послесвечения и хорошее временное разрешение совпадений являются необходимым набором параметров для применения сцинтилляционного материала в ПЭТ. В табл. 2 приведено сравнение свойств сцинтилляционных материалов, используемых в ПЭТ сканерах, в сравнении с описанным в настоящей работе материалом GYLAGG:Ce [46]. Также приведено сравнение временного разрешения совпадений, полученного с образцов размерами 3 × 3 × (2 – 5) mm в лабораторных условиях с коммерческими кремниевыми фотоумножителями (SiPM) при различных температурах. Точность измерения временного разрешения совпадений (CTR) составила  $\pm 2$  ps.

Важным требованием для улучшения чувствительности является высокое CTR для эффективного использования подхода Time-of-Flight (TOF) для регистрации аннигиляционных  $\gamma$ -квантов. Улучшение отношения

G-значений сигнал-шум (SNR) с использованием TOF и без него зависит от CTR:

$$G = \sqrt{\frac{SNR_{TOF}}{SNR_{nonTOF}}} = \sqrt{\frac{2D}{c \cdot CTR}}, \quad (1)$$

где  $c$  — скорость света. Предполагая, что диаметр пациента  $D$  составляет 40 cm, коэффициент улучшения отношения сигнал-шум (SNR) может достигать 2.3 и 5.2 для разрешения CTR 500 и 100 ps соответственно.

Материал BGO использовался в сканерах первых поколений и активно используется сейчас в недорогих сканерах, например, в производимых компанией General Electric (США). Современные выпускаемые ПЭТ сканеры на основе BGO имеют временное разрешение (FWHM) от 550 до 650 ps. Использование TOF позволяет улучшить восстановленное отношение сигнал/шум изображения примерно в два раза по сравнению со стандартными ПЭТ сканерами без TOF.

В детекторной части ПЭТ сканеров намечился переход к использованию SiPM. Их недостатком являются относительно высокие собственные шумы, которые, однако, могут быть уменьшены понижением температуры. В детекторе на основе представленного в настоящей работе сцинтиллятора наблюдается существенное улучшение временного разрешения при понижении температуры. Это является следствием того, что с понижением температуры в гадолиний-алюминий-галлиевых гранатах выход сцинтилляций увеличивается [59]. По этой же причине происходит улучшение энергетического разрешения.

### 2.3. Измерение нейтронов от радиоизотопных источников

Результаты измерений и использованием нейтронной дозиметрической линейки представлены на рис. 7 и хорошо коррелируют со спектрами отклика монокристал-

**Таблица 2.** Сцинтилляционные материалы для ПЭТ сканеров

Материал	Плотность, g/cm <sup>3</sup>	Z <sub>eff</sub> /коэфф. поглощения для 511 keV, cm <sup>-1</sup>	Световой выход, phot./MeV	$\tau_{sc}$ , ns	$\lambda_{max,sc}$ , nm	Временное разрешение совпадений, ps
Bi <sub>3</sub> Ge <sub>4</sub> O <sub>12</sub> (BGO)	7.13	75.2/0.37	8 200	300	505	550
Lu <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> :Ce (LSO)	7.4	66/0.28	27 000	40	420	115(20°C) 117(0°C) 121(-20°C)
(Lu,Y) <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> :Ce (LYSO)	7.0	62/0.21	30 000	35	420	93(20°C) 95(0°C) 104(-20°C)
(Gd,Y,Lu) <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> Ga <sub>3</sub> O <sub>12</sub> :Ce,Mg (GYLAGG:Ce)	6.7	52/0.13	41 000	14(84%) 78(16%)	520	97(20°C) 95(0°C) 93(-20°C)



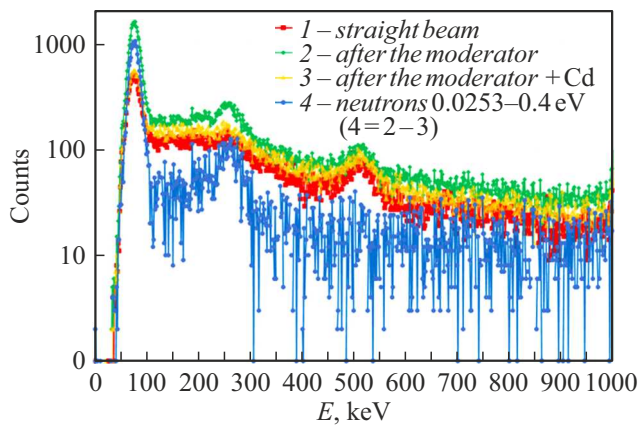


Рис. 7. Амплитудные спектры, измеренные на стенде с источником  $^{238}\text{Pu-Be}$ .

лов GAGG:Ce к нейтронам [17]. Амплитудный спектр 1 был получен в прямом пучке быстрых нейтронов с потоком  $223.0 \text{ neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$  без материала между источником и детектором. Спектр 2 был получен с использованием замедлителя, установленного перед источником  $^{238}\text{Pu-Be}$ . Амплитудный спектр 3 был измерен при использовании замедлителя и кадмиевого фильтра, установленного перед источником. Все спектры представлены после вычитания вклада естественного фона, времена накопления спектров составляли 600 с, включая спектр естественного фона. Спектр 4 получен путем

вычитания спектра 3 из спектра 2 и представляет собой спектр регистрации нейтронов в диапазоне энергий от 0.0253 до 0.4 eV при потоке  $25.0 \text{ neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$  в точке измерения. Видно, что материал имеет хорошую чувствительность также в области надтепловых нейтронов.

Рассчитанные значения чувствительности и эффективности обнаружения для различных энергетических диапазонов гамма-квантов, образованных в сцинтилляторе при взаимодействии с нейтронами, начиная с 45 keV, перечислены в табл. 3. Чувствительность рассчитывалась по сумме отсчетов в диапазоне энергий, известных потоков и времени накопления.

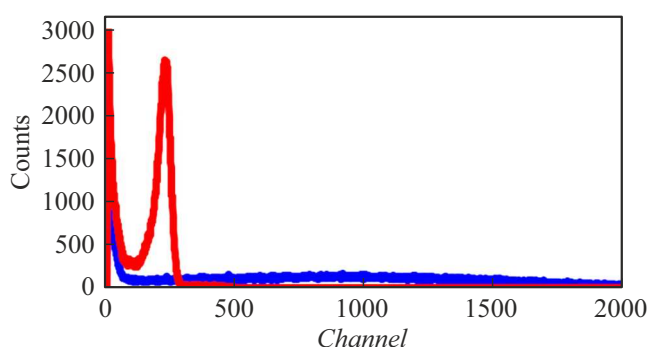
В нижней части табл. 3 просуммированы нейтронные эквиваленты скоростей счета от естественного фона  $0.1 \mu\text{Sv}/\text{h}$  и от Co-60 при мощности экспозиционной дозы  $1.0 \mu\text{Sv}/\text{h}$ . Данные были получены в нормальных условиях при комнатной температуре (300 K). Суммарные (основная и дополнительные) погрешности для результатов чувствительности и эффективности для быстрых нейтронов оценены как не превышающие  $\pm 5\%$ . Источниками этой ошибки являются в основном статистические ошибки, ошибки в определении потока и позиционировании детектора.

Основная и дополнительные погрешности измерений для нейтронных эквивалентов скоростей счета от естественного фона  $0.1 \mu\text{Sv}/\text{h}$  не превышали  $\pm 22\%$  для диапазона энергий  $45 \cdot 10^5 \text{ keV}$  и  $\pm 12\%$  для всех остальных, включая суммарный вклад неточности поверочного дозиметра установки и статистической погрешности в по-

Таблица 3. Расчетная чувствительность и эффективность регистрации для различных энергетических диапазонов  $\gamma$ -квантов, образованных в детекторном материале, приведенные к толщине детектора 1 см, при взаимодействии с нейтронами; нейтронные эквиваленты скоростей счета от естественного фона  $0.1 \mu\text{Sv}/\text{h}$  и Co-60  $1.0 \mu\text{Sv}/\text{h}$

Энергетический диапазон гамма-квантов, keV	Быстрые нейтроны		Медленные нейтроны	
	Чувствительность, импульс в секунду на $1 \text{ neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$	Эффективность регистрации нейтронов, %	Чувствительность, импульс в секунду на $1 \text{ neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$	Эффективность регистрации нейтронов, %
45 – 105	0.073	3.74	1.14	44.9
45 – 305	0.182	9.29	1.64	64.6
45 – 550	0.247	12.6	1.80	71.0
45 – 1000	0.298	15.2	2.04	80.3
Энергетический диапазон гамма-квантов, keV	Быстрые нейтроны		Медленные нейтроны	
	Нейтронный эквивалент скорости счета от естественного фона $0.1 \mu\text{Sv}/\text{h}$ , $\text{neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$	Нейтронный эквивалент скорости счета от Co-60 $1.0 \mu\text{Sv}/\text{h}$ , $\text{neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$	Нейтронный эквивалент скорости счета от естественного фона $0.1 \mu\text{Sv}/\text{h}$ , $\text{neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$	Нейтронный эквивалент скорости счета от Co-60 $1.0 \mu\text{Sv}/\text{h}$ , $\text{neutron}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$
45 – 105	2.07	10.6	0.133	0.679
45 – 305	3.85	21.6	0.428	2.39
45 – 550	4.40	25.2	0.603	3.45
45 – 1000	4.86	31.1	0.709	4.55





**Рис. 8.** Амплитудные спектры экрана, изготовленного на основе порошка из керамического GYAGG-сцинтиллятора (красная кривая) и образца сравнения (синяя кривая).

лученном спектре. Суммарная ошибка для нейтронных эквивалентов скоростей счета от Co-60 не превышала  $\pm 6\%$ , включая среднеквадратичную статистическую погрешность значения мощности дозы и неопределенность позиционирования.

Разработанный детектор демонстрирует высокую чувствительность к быстрым нейтронам. Использование замедлителя еще больше улучшает чувствительность. В то же время нейтронные эквиваленты скоростей счета от Co-60 и даже от естественного фона являются относительно высокими. Здесь следует заметить, что для детектора тепловых нейтронов толщина может быть значительно уменьшена (вплоть до 0.1–0.2 mm) без критической потери чувствительности к нейтронам (почти 45% полезных отсчетов от нейтронов (табл. 3) сосредоточены в группе линий с максимумом вблизи 80 keV, представляющей собой суперпозицию линий характеристического рентгеновского излучения и электрона внутренней конверсии с примерно равной энергией, для которых эффективная длина пробега в GYAGG не превышает 50–100  $\mu\text{m}$ ).

При взаимодействии нейтронов с энергией более 8 MeV с веществом GYAGG:Ce происходит генерация вторичных заряженных частиц,  $\alpha$ -частиц и протонов.

Как показано в работе [60], спектр быстрых нейтронов отделяется по форме импульса от фонового  $\gamma$ -излучения.

## 2.4. Детекторы экранного типа

Композитные детекторы на основе разработанных материалов могут быть использованы для создания композитных детекторных элементов экранного типа. При этом прозрачная керамика может размалываться в порошок с заданным гранулометрическим составом, а в композит добавляться как прозрачное полимерезультирующее связующее, так и дополнительный поглотитель нейтронов в виде порошка  ${}^6\text{LiF}$ . В отличие от используемого в подобных композитах сцинтиллятора ZnS(Ag), частицы керамики сохраняют оптическую прозрачность, что способствует лучшему светосбору композита.

Амплитудные спектры композитных образцов, содержащих фторид лития природного происхождения, были получены при использовании источника  $\alpha$ -частиц  ${}^{241}\text{Am}$  ( $10^4$  Bq) посредством методики, описанной в работе [61]. На рис. 8 приведено сравнение отклика образцов, изготовленных из порошка керамического GYAGG-сцинтиллятора. Для измерения выхода сцинтилляций с поверхности образца композит был насыщен порошком граната,  $\sim 90\%$  по объему, что дало плотность  $\sim 50$  mg/cm<sup>2</sup>. В качестве образца сравнения был использован фрагмент нейтронного экрана Scintacor ND 12  $\times$  12 mm (ND-экран). Измерения были проведены с использованием фотоэлектронного умножителя HAMAMATSU R329, наклоненного под углом 45° к облучаемой  $\alpha$ -частицами поверхности источника.

Образец на основе GYAGG продемонстрировал хорошо различимый пик полного поглощения  $\alpha$ -частиц, что в принципе недостижимо с использованием экрана на основе непрозрачных частиц ZnS(Ag). Это позволяет проводить амплитудную селекцию при регистрации как заряженных частиц, так и нейтронов.

Для измерения пространственного разрешения при регистрации нейтронов были изготовлены образцы с использованием  ${}^6\text{LiF}$  (обогащение 90%). В состав покрытия экрана включали сцинтиллятор, фторид лития и связующее. Плотность слоя была менее 30 mg/cm<sup>2</sup>.

**Таблица 4.** Результаты измерений пространственного разрешения образцов и параметры их кинетики сцинтилляций

Образец экрана	Измеренное пространственное разрешение с системой считывания, $\mu\text{m}$	Рассчитанное собственное пространственное разрешение экрана, $\mu\text{m}$	Время затухания кинетики сцинтилляций, s
Образец сравнения GOS(Tb)	$202 \pm 5.0$	$52.7 \pm 7.1$	$2 \times 10^{-3}$
Образец сравнения ZnS(Ag)/ ${}^6\text{LiF}$	$220 \pm 5.2$	$101.9 \pm 7.2$	$4.5 \times 10^{-6}$
GYAGG:Ce (30 vol.%) LiF (30 vol.%) Связующее (40 vol.%)	$216 \pm 5.1$	$92.9 \pm 7.1$	$80 \times 10^{-9}$
GYAGG:Tb (23 vol.%) LiF(73 vol.%) Связующее (4 vol.%)	$212 \pm 5.1$	$81.2 \pm 7.1$	$2 \times 10^{-3}$

Собственное пространственное разрешение системы считывания на нейтронном источнике НИЦ „Курчатовский институт“ составляло  $195 \pm 5.0 \mu\text{m}$ . В качестве образцов сравнения использовались экраны GOS(Tb) и ZnS(Ag)<sup>6</sup>LiF толщиной 46 и  $100 \mu\text{m}$  соответственно.

Пространственное разрешение измерялось путем установления перед композитом щелевой кадмиевой маски, размер одного пикселя оптической системы составлял  $65 \mu\text{m}$ . Результаты измерений пространственного разрешения образцов и параметры их кинетики сцинтилляций представлены в табл. 4.

Пространственное разрешение образцов экранов на основе разработанных материалов превосходит таковое для ZnS(Ag)<sup>6</sup>LiF и приближается к полученному с GOS(Tb). Длительность сцинтилляционного импульса в разработанном образце экрана на основе GYAGG, содержащем Ce, меньше, чем у образца сравнения GOS(Tb), в 25 000 раз, а у образца сравнения ZnS(Ag)<sup>6</sup>LiF — в 55 раз. Скорость набора статистики, а, следовательно, и производительность измерений, повышаются соответственно.

## Заключение

Разработана оригинальная технология получения прозрачных керамических сцинтилляционных материалов со структурным типом граната. Сцинтилляторы (Gd,Y)<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>:Ce, (Gd,Y)<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>:Tb,Ce и (Gd,Y)<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>:Ce,Pr могут использоваться в рентгеновских сканерах различного назначения, при этом способны обеспечивать высокие эксплуатационные характеристики как в детекторах с интегрированием отклика на поглощенную энергию рентгеновского излучения, так и с измерением его индивидуальных квантов.

Сцинтиллятор (Gd,Y,Lu)<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>:Ce,Mg по совокупности параметров может заменить сцинтилляторы (Lu,Y)<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce в детекторных секциях позитронных эмиссионных сканеров, при этом достигнутое временное разрешение совпадений с детекторными элементами из этого материала позволяет эффективно использовать времяпролетную методику TOF для аннигиляционных  $\gamma$ -квантов. Материал может быть изготовлен в виде пластин толщиной 3 – 4 mm и использован с минимальной потерей кристаллической массы при механической обработке для создания пиксельных элементов для матричных детекторных модулей.

Наличие атомов гадолиния в разработанных материалах также позволяет их использовать для регистрации нейтронов в широком диапазоне их энергий и в различных конструктивах детекторов.

## Финансирование работы

Образцы материалов были получены в НИЦ „Курчатовский институт“ при финансовой поддержке Российской Федерации в лице Министерства науки и высшего образования, соглашение № 075-15-2021-1353 от

12.10.2021. Аналитические исследования выполнены с использованием научного оборудования ЦКП „Исследовательский химико-аналитический центр НИЦ „Курчатовский институт““. Авторы из Уральского федерального университета благодарны Министерству науки и высшего образования Российской Федерации за поддержку в рамках проекта FEUZ-2023-0013.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов

## Список литературы

- [1] P. Lecoq, A. Gektin, M. Korzhik. *Inorganic Scintillators for Detector Systems; Particle Acceleration and Detection* (Springer International Publishing, Cham, 2017)
- [2] G. Zhang, Y. Wu. *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, **19**, 664 (2022). DOI: 10.1111/ijac.13856
- [3] E. Auffray, A. Fedorov, V. Dormenev, J. Houžvička, M. Korjik, M.T. Lucchini, V. Mechinsky, S. Ochesanu. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **856**, 7 (2017). DOI: 10.1016/j.nima.2016.09.037
- [4] E. Auffray, G. Dosovitskiy, A. Fedorov, I. Guz, M. Korjik, N. Kratochwill, M. Lucchini, S. Nargelas, D. Kozlov, V. Mechinsky. *Radiat. Phys. Chem.*, **164**, 108365 (2019). DOI: 10.1016/j.radphyschem.2019.108365
- [5] V. Alenkov, O. Buzanov, G. Dosovitskiy, V. Egorychev, A. Fedorov, A. Golutvin, Yu. Guz, R. Jacobsson, M. Korjik, D. Kozlov, V. Mechinsky, A. Schopper, A. Semennikov, P. Shatalov, E. Shmanin. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **916**, 226 (2019). DOI: 10.1016/j.nima.2018.11.101
- [6] V. Retivov, V. Dubov, I. Komendo, P. Karpyuk, D. Kuznetsova, P. Sokolov, Y. Talochka, M. Korzhik. *Nanomaterials*, **12**, 4295 (2022). DOI: 10.3390/nano12234295
- [7] D. Zhu, M. Nikl, W. Chewpraditkul, J. Li. *J. Adv. Ceram.*, **11**, 1825 (2022). DOI: 10.1007/s40145-022-0660-9
- [8] Y. Talochka, A. Vasil'ev, M. Korzhik, G. Tamulaitis. *J. Appl. Phys.*, **132**, 053101 (2022). DOI: 10.1063/5.0098905
- [9] J.R. Cárdenas. *Superlattices Microstruct.*, **100**, 548 (2016). DOI: 10.1016/j.spmi.2016.10.009
- [10] A.V. Gektin, A.N. Belsky, A.N. Vasil'ev. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **61**, 262 (2014). DOI: 10.1109/TNS.2013.2277883
- [11] M. Korzhik, G. Tamulaitis, A.N. Vasil'ev. *Physics of Fast Processes in Scintillators; Particle Acceleration and Detection* (Springer International Publishing, Cham, 2020)
- [12] K. Kamada, T. Endo, K. Tsutumi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, A. Fukabori, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl. *Cryst. Growth Des.*, **11**, 4484 (2011). DOI: 10.1021/cg200694a
- [13] K. Kamada, S. Kurosawa, P. Prusa, M. Nikl, V. Kochurikhin, T. Endo, K. Tsutumi, H. Sato, Y. Yokota, K. Sugiyama, A. Yoshikawa. *Opt. Mater.*, **36** (12), 1942 (2014). DOI: 10.1016/j.optmat.2014.04.001
- [14] M. Korzhik, V. Alenkov, O. Buzanov, G. Dosovitskiy, A. Fedorov, D. Kozlov, V. Mechinsky, S. Nargelas, G. Tamulaitis, A. Vaitkevičius. *Cryst. Eng. Comm.*, **22**, 2502 (2020). DOI: 10.1039/D0CE00105H

- [15] K. Omuro, M. Yoshino, K. Bartosiewicz, T. Horiai, R. Murakami, K.J. Kim, K. Kamada, R. Kucerkova, V. Babin, M. Nikl, A. Yamaji, T. Hanada, Y. Yokota, S. Kurosawa, Y. Ohashi, H. Sato, A. Yoshikawa. *J. Lumin.*, **273**, 120663 (2024). DOI: 10.1016/j.jlumin.2024.120663
- [16] W. Chewpraditkul, N. Pattanaboonmee, W. Chewpraditkul, T. Szczesniak, M. Moszynski, K. Kamada, A. Yoshikawa, R. Kurcerava, M. Nikl. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **1004**, 165381 (2021). DOI: 10.1016/j.nima.2021.165381
- [17] M. Korzhik, K.-T. Brinkmann, G. Dosovitskiy, V. Dormenev, A. Fedorov, D. Kozlov, V. Mechinsky, H.-G. Zaunick. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **66** (1), 536 (2018).
- [18] T. Wegh, A. Meijerink, R.-J. Lamminmaki, J. Holsa. *J. Lumin.*, **87–89**, 1002 (2000). DOI: 10.1016/S0022-2313(99)00506-2
- [19] M. Korzhik, V. Retivov, A. Bondarau, G. Dosovitskiy, V. Dubov, I. Kamenskikh, P. Karpuk; D. Kuznetsova, V. Smyslova, V. Mechinsky, V. Pustovarov, D. Tavrunov, E. Tishchenko, A. Vasil'ev. *Crystals*, **12**, 1196 (2022). DOI: 10.3390/cryst12091196
- [20] X. Chen, H. Qin, Y. Zhang, Y. Liu, J. Jiang, H. Jiang. *Opt. Mater. Express*, **6** (2), 610 (2016). DOI: 10.1364/OME.6.000610
- [21] H. Wiczorek, V. Khanin, C. Ronda, J. Boerekamp, S. Spoor, R. Steadman, I. Venevtsev, K. Chernenko, T. Tikhvatulina, I. Vrubel, A. Meijerink, P. Rodnyi. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **67** (8), 1934 (2020). DOI: 10.1109/TNS.2020.3001303
- [22] X. Li, D.H. Hu, Y.Z. Ma, Q.E. Sa, X.R. Wang, F.X. Wang, Z.Q. Song, K.F. Chao. *Sol. St. Phen.*, **323**, 66 (2021). DOI: 10.4028/www.scientific.net/SSP.323.66
- [23] R.H. Lamoreaux, D.L. Hildenbrand, L. Brewer. *J. Phys. Chem. Ref. Data.*, **16** (3), 419 (1987). DOI: 10.1063/1.555799
- [24] N. Sakar, H. Gergeroglu, S.A. Akalin, S. Oguzlar, S. Yildirim. *Opt. Mater.*, **103**, 109819 (2020). DOI: 10.1016/j.optmat.2020.109819;
- [25] J. Marchal, T. John, R. Baranwal, T. Hinklin, R.M. Laine. *Chem. Mater.*, **16** (5), 82 (2004). DOI: 10.1021/cm0217831
- [26] P. Głuchowski, R. Tomala, R. Kowalski, O. Ignatenko, M.E. Witkowski, W. Drozdowski, W. Stręk, W. Ryba-Romanowski, P. Solarz. *Ceram. Int.*, **45** (17), 21870 (2019). DOI: 10.1016/j.ceramint.2019.07.197
- [27] J. Li, Y. Pan, F. Qiu, Y. Wu, J. Guo. *Ceram. Int.*, **34** (1), 141 (2008). DOI: 10.1016/j.ceramint.2006.09.002
- [28] M.P. Pechini. US Patent 3,3306,97 (1967)
- [29] X. Zhang, G. Yang, R. Chi, Y. Shi, X. Zhao, H. Jiang, F. Guo, G. Wang, J. Guo, Z. Zhang. *Int. J. Appl. Ceram. Tech.*, **19** (5), 2419 (2022). DOI: 10.1111/ijac.14084
- [30] Z. Hu, X. Chen, X. Liu, X. Li, T. Xie, Y. Shi, H. Kou, Y. Pan, E. Mihóková, M. Nikl, J. Li. *J. Alloy. Compd.*, **818**, 152885 (2020). DOI: 10.1016/j.jallcom.2019.152885
- [31] D. Sun, Q. Zhang, Z. Wang, J. Su, C. Gu, A. Wang, S. Yin. *Mat. Sci. Eng. A*, **392** (1–2), 278 (2005). DOI: 10.1016/j.msea.2004.09.057
- [32] Y. Sun, S. Yang, Y. Zhang, J. Jiang, H. Jiang. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **61** (1), 306 (2014). DOI: 10.1109/TNS.2013.2291320
- [33] G.A. Dosovitskiy, P.V. Karpyuk, P.V. Evdokimov, D.E. Kuznetsova, V.A. Mechinsky, A.E. Borisevich, A.A. Fedorov, V.I. Putlayev, A.E. Dosovitskiy, M.V. Korzhik. *Cryst. Eng. Comm*, **19**, 4260 (2017). DOI: 10.1039/C7CE00541E
- [34] A.A. Федоров, В.В. Дубов, Л.В. Ермакова, А.Г. Бондарев, П.В. Карпюк, М.В. Коржик, Д.Е. Кузнецова, В.А. Мечинский, В.Г. Смыслова, Г.А. Досовицкий, П.С. Соколов. *Приборы и техника эксперимента*, **2**, 52 (2023). DOI: 10.31857/S0032816223010159 [A.A. Fedorov, V.V. Dubov, L.V. Ermakova, A.G. Bondarev, P.V. Karpyuk, M.V. Korzhik, D.E. Kuznetsova, V.A. Mechinsky, V.G. Smyslova, G.A. Dosovitskiy, P.S. Sokolov. *Instrum. Exp. Tech.*, **66**, 234 (2023). DOI: 10.1134/S002044122301013X]
- [35] L.V. Ermakova, V.V. Dubov, R.R. Saifutyarov, D.E. Kuznetsova, M.S. Malozovskaya, P.V. Karpyuk, G.A. Dosovitskiy, P.S. Sokolov. *Ceramics*, **6**, 43 (2024). DOI: 10.3390/ceramics6010004
- [36] L.V. Ermakova, V.G. Smyslova, V.V. Dubov, P.V. Karpyuk, P.S. Sokolov, I.Yu. Komendo, A.G. Bondarau, V.A. Mechinsky, M.V. Korzhik. *Photonisc*, **11**, 685 (2024). DOI: photonisc11080695
- [37] L.V. Ermakova, V.G. Smyslova, V.V. Dubov, D.E. Kuznetsova, M.S. Malozovskaya, R.R. Saifutyarov, P.V. Karpyuk, P.S. Sokolov, I.Yu. Komendo, A.G. Bondarau, V.A. Mechinsky, M.V. Korzhik. *Ceramics*, **6**, 1478, (2023). DOI: 10.3390/ceramics6030091
- [38] П.В. Карпюк, Л.В. Ермакова, В.В. Дубов, Д.Е. Лелекува, Р.Р. Сайфутяров, П.А. Жданов, М.С. Мало-зовская, И.Ю. Комендо, П.С. Соколов, А.Г. Бондарев, М.В. Коржик. *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, (2024). [P.V. Karpyuk, L.V. Ermakova, V.V. Dubov, D.E. Lelekova, R.R. Saifutyarov, P.A. Zhdanov, M.S. Malozovskaya, I.Yu. Komendo, P.S. Sokolov, A.G. Bondarau, M.V. Korzhik, J. Surf. Invest. X-ray., **18**, 983 (2024). DOI: 10.1134/S1027451024700733]
- [39] Z. Luo, H. Jiang, J. Jiang, R. Mao. *Ceram. Inter.*, **41** (1), 873 (2015). DOI: 10.1016/j.ceramint.2014.08.137
- [40] Z.M. Seeley, N.J. Cherepy, S.A. Payne. *J. Cryst. Growth.*, **379**, 793 (2013). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.11.042
- [41] Q. Yao, L. Zhang, P. Gao, B. Sun, C. Shao, Y. Ma, T. Zhou, M. Li, H. Chen, Y. Wang. *J. Am. Ceram. Soc.*, **103** (6), 3513 (2020). DOI: 10.1111/jace.17052
- [42] S. Chen, B. Jiang, Q. Zhu, W. Ma, G. Zhang, Y. Jiang, W. Chewpraditkul, L. Zhang. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A.*, **942**, 162360 (2019). DOI: 10.1016/j.nima.2019.162360
- [43] X. Qiu, Z. Luo, J. Zhang, H. Jiang, J. Jiang. *Ceram. Inter.*, **46** (4), 4550 (2020). DOI: 10.1016/j.ceramint.2019.10.183
- [44] M. Korzhik, P. Karpyuk, A. Bondarau, A. Plyushin, I. Kamenskikh, D. Lelekova, V. Pustovarov, V. Retivov, V. Smyslova, D. Tavrunov, A. Vasil'ev. *J. Lumin.*, **265**, 120226 (2024). DOI: 10.1016/j.jlumin.2023.120226
- [45] M. Korzhik, R. Abashev, A. Fedorov, G. Dosovitskiy, E. Gordienko, I. Kamenskikh, D. Kazlou, D. Kuznetsova, V. Mechinsky, V. Pustovarov, V. Retivov, A. Vasil'ev. *Nucl. Eng. Technol.*, **54** (7), 2579 (2022). DOI: 10.1016/j.net.2022.02.007
- [46] M. Korzhik, V. Dubov, M. Bazalevsky, A. Bondarau, O. Buzanov, D. Lelekova, P. Karpuk, V. Mechinsky, V. Vasiliev, D. Yanushevich. *Opt. Mater.*, **151**, 115334 (2024). DOI: 10.1016/j.optmat.2024.115334
- [47] P. Karpyuk, M. Korzhik, A. Fedorov, I. Kamenskikh, I. Komendo, D. Kuznetsova, E. Leksina, V. Mechinsky, V. Pustovarov, V. Smyslova, V. Retivov, Y. Talochka, D. Tavrunov, A. Vasil'ev. *Appl. Sci.*, **13**, 3323 (2023). DOI: 10.3390/app13053323

- [48] ПОСТАНОВЛЕНИЕ ГЛАВНОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО САНИТАРНОГО ВРАЧА РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ от 16 сентября 2013 года N 44 „Об утверждении СанПиН 2.6.1.3106-13 „Гигиенические требования по обеспечению радиационной безопасности при использовании рентгеновских сканеров для персонального досмотра людей,, (2013)
- [49] C. Ronda. *Opt. Mater. X*, **22**, 100293 (2024). DOI: 10.1016/j.omx.2024.100293
- [50] P.A. Rodnyi. *Opt. Spectrosc.*, **107** (2), 270 (2009). DOI: 10.1134/S0030400X09080177
- [51] L. Jiang, D. Jiyang, H. Xinyou. *J. Inorg. Mater.*, **36** (8), 789 (2021). DOI: 10.15541/jim20200544
- [52] K. Taguchi, J.S. Iwanczyk. *Medical Physics*, **40** (10), 100901 (2013). DOI: 10.1118/1.4820371
- [53] A. Esquivel, A. Ferrero, A. Mileto, F. Baffour, K. Horst, P.S. Rajiah, A. Inoue, S. Leng, C. McCollough, J.G. Fletcher. *Korean J. Radiol.*, **23** (9), 854. DOI: 10.3348/kjr.2022.0377
- [54] Y. Kudo, N. Ikeda. *Video-Assisted Thoracic Surgery*, **0** (4), 268 (2019). DOI: 10.21037/vats.2019.01.02
- [55] A. Pourmorteza, R. Symons, V. Sandfort, M. Mallek, M.K. Fuld, G. Henderson, E.C. Jones. A.M. Ashkan, L.R. Folio, D.A. Blumke. *Radiology*, **279** (1), 239 (2016). DOI: 10.1148/radiol.2016152601
- [56] M.T. Vervoorn, M. Wulfse, F.A.A. Mohamed Hoesein, M. Stellingwerf, N.P. van der Kaaij, L.M. de Heer. *Front Surg.*, **26** (9), 1079857 (2022). DOI: 10.3389/fsurg.2022.1079857
- [57] T.F. Budinger. *J. Nucl. Med.*, **24**, 73 (1983).
- [58] M. Conti, B. Bendriem. *Clinical and Translational Imaging*, **7**, 139 (2019). DOI: 10.1007/s40336-019-00316-5
- [59] M. Korjik, V. Alenkov, A. Borisevich, O. Buzanov, V. Dormenev, G. Dosovitskiy, A. Dosovitskiy, A. Fedorov, D. Kozlov, V. Mechinsky, R.W. Novotny, G. Tamulaitis, V. Vasiliev, H.-G. Zaunick, A.A. Vaitkevicius. *Nucl. Instrum. Meth. A.*, **871**, 42 (2017). DOI: 10.1016/j.nima.2017.07.045
- [60] A. Fedorov, A. Bondarau, A. Dzhurik, V. Bogomolov, A. Iyudin, Yu. Kashchuk, V. Mechinsky, S. Obudovsky, S. Svertilov, Y. Wu, D. Yanushevich, M. Korzhik. *Nucl. Instrum. Meth. A.*, **1062**, 169155 (2024). DOI: 10.1016/j.nima.2024.169155
- [61] E. Gordienko, A. Fedorov, E. Radiuk, V. Mechinsky, G. Dosovitskiy, E. Vashchenkova, D. Kuznetsova, V. Retivov, A. Dosovitskiy, M. Korjik, R. Sandu. *Opt. Mater.*, **78**, 312 (2018). DOI: 10.1016/j.optmat.2018.02.045