

# 10

## Низкотемпературный синтез стеклокерамики с кристаллитами $\text{YNbO}_4 : \text{Eu}^{3+}$

© В.А. Кравец<sup>1</sup>, Е.В. Иванова<sup>1</sup>, К.Н. Орехова<sup>1</sup>, Г.А. Гусев<sup>1</sup>, В.В. Васильевич<sup>2</sup>, М.И. Москвичёв<sup>1</sup>, М.В. Заморанская<sup>1</sup>

<sup>1</sup> ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Гомельский государственный университет им. Ф. Скорины,  
246019 Гомель, Республика Беларусь

e-mail: ggusev@mail.ioffe.ru

Поступила в редакцию 23.06.2020 г.

В окончательной редакции 30.09.2020 г.

Принята к публикации 14.10.2020 г.

Основной целью работы было проведение низкотемпературного синтеза стеклокерамики с кристаллитами  $\text{YNbO}_4 : \text{Eu}^{3+}$  и исследование структурных и люминесцентных свойств получившихся образцов. В рамках работы впервые были исследованы включения, кристаллизовавшиеся в системах  $\text{SiO}_2 - \text{Na}_2\text{O} - \text{K}_2\text{O} - \text{Y}_2\text{O}_3 - \text{Nb}_2\text{O}_5 - \text{Eu}_2\text{O}_3$  (SiNaK) и  $\text{V}_2\text{O}_5 - \text{Na}_2\text{O} - \text{Y}_2\text{O}_3 - \text{Nb}_2\text{O}_5 - \text{Eu}_2\text{O}_3$  (BNa) в условиях низкотемпературного синтеза. Было показано, что в обеих исследуемых системах кристаллизовался  $\text{YNbO}_4 : \text{Eu}^{3+}$ . В системе SiNaK при выбранных условиях также произошла кристаллизация  $\text{SiO}_2$  (кварц, кристаболит и тридимит). Наиболее перспективной для синтеза активированной стеклокерамики с  $\text{YNbO}_4$  показала себя система BNa, так как в ней кристаллизовались только искомые кристаллиты. Люминесцентные свойства кристаллических включений были исследованы с использованием метода локальной катодolumинесценции. Состав и структура стеклокерамики были изучены методами рентгеноспектрального микроанализа и рентгенодифракционного фазового анализа.

**Ключевые слова:**  $\text{YNbO}_4$ , люминесценция, ион европия, стеклокерамика.

DOI: 10.21883/OS.2021.02.50559.179-20

## Введение

Ниобат иттрия, активированный редкими землями, является перспективным радиационно-стойким сцинтиллятором, в частности рентгенолюминофором. Такие материалы могут использоваться в медицинской и промышленной рентгенографии [1,2]. Ниобат иттрия обладает высокой плотностью, что немаловажно при поглощении и преобразовании ионизирующего излучения в видимый свет, не гигроскопичен, а также обладает высокой радиационной и химической стойкостью. Кроме того, ниобат иттрия имеет собственную широкую полосу люминесценции в синем спектральном диапазоне, связанную с комплексом  $\text{NbO}_4^{3-}$  [3]. При возбуждении высокоэнергетическим излучением ниобата иттрия, дополнительно активированного редкоземельными ионами (РЗИ), происходит передача возбуждения с уровней, ответственных за собственную люминесценцию матрицы, на уровни РЗИ, что повышает выход люминесценции активатора при поглощении ионизирующего излучения [4,5].

Наиболее часто используются промышленные порошковые рентгенолюминофоры: сульфид цинка, легированный серебром, и реже окисульфиды редких земель. В порошковых материалах всегда присутствуют безызлучательные потери, связанные с границами зерен. Это уменьшает выход люминесценции и разрешение рентгеновского экрана. В связи с этим одним из наиболее пер-

спективных направлений является разработка методов синтеза оптически однородных стеклокристаллических материалов на основе оксидов, активированных РЗИ, в том числе и ниобатов. Подобные гибридные материалы совмещают в себе свойства как стекол, так и кристаллов. Их синтез и последующая обработка аналогична синтезу и обработке стекла, при этом уровень безызлучательных потерь значительно ниже, чем в чисто аморфных материалах.

Стеклокерамика на основе ниобатов редкоземельных элементов обладает интенсивной люминесценцией под воздействием ионизирующего излучения. Результаты современных исследований по синтезу стеклокристаллических материалов на основе ортониобатов приводятся в [6,7]. Основным недостатком материалов, синтезированных в рамках данных исследований, является высокая температура синтеза (около  $1600^\circ\text{C}$ ).

$\text{YNbO}_4$  имеет два типа структурной модификации [2,8]: моноклинная фаза (М-тип) с пространственной группой  $I2/a$  со структурой фергусонита и тетрагональная фаза (Т-тип) со структурой шеелита, стабильная при высоких температурах. Тетрагональная фаза переходит в моноклинную в интервале температур от  $800$  до  $500^\circ\text{C}$ , причем М-тип реализуется при охлаждении расплава [8]. В  $\text{M-YNbO}_4$  ион Nb и четыре атома O образуют искаженный тетраэдр, локальная позиция ионов  $\text{Nb}^{5+}$  и

$Y^{3+}-C_2$ , а иона  $O_2^- - C_1$  [2,9]. В ниобате иттрия РЗИ занимают позиции  $Y$  с локальной симметрией  $C_2$ .

В качестве активатора в данной работе используется РЗИ  $Eu^{3+}$ . Спектры  $Eu^{3+}$  в матрице  $YNbO_4$  детально изучены в работах [1–3,10,11]. Ионы  $Eu^{3+}$  в матрице  $YNbO_4$  обладают интенсивной красной люминесценцией, связанной с энергетическими переходами с уровней  ${}^5D_0$  и  ${}^5D_1$ . Спектральное положение, соотношение интенсивностей полос и количество расщеплений в спектрах редкоземельных ионов зависят от локальной симметрии иона в материале. Благодаря этому  $Eu^{3+}$  можно использовать в качестве люминесцентного зонда, по спектрам которого можно идентифицировать локальное окружение РЗИ в легированном материале [12,13].

Целью настоящей работы является поиск аморфной матрицы для низкотемпературного синтеза стеклокерамики с кристаллическими включениями  $YNbO_4$ . В рамках данной работы предлагается впервые исследовать включения, кристаллизовавшиеся в системах  $SiO_2-Na_2O-K_2O-Y_2O_3-Nb_2O_5-Eu_2O_3$  (SiNaK) и  $B_2O_5-Na_2O-Y_2O_3-Nb_2O_5-Eu_2O_3$  (BNa) в условиях низкотемпературного синтеза. Исследование структуры, состава и оптических свойств синтезированных материалов выполнено методами рентгеновской дифракции (РДФА), рентгеноспектрального микроанализа (РСМА) и локальной катодолуминесценции (КЛ) с пространственным разрешением от  $1 \mu m$ .

## Методы синтеза образцов

В качестве матриц для низкотемпературного синтеза оксидной стеклокерамики с включениями ниобата иттрия, легированного  $Eu^{3+}$ , были выбраны натрий, боратная и кремний-натрий-калиевая матрицы. Данные матрицы характеризуются относительно низкой температурой синтеза при стандартных условиях (от  $900$  до  $1200^\circ C$ ). Соединения иттрия, ниобия и европия добавлялись в матрицу в такой пропорции, чтобы в синтезируемом материале выполнялись следующие мольные соотношения:  $M(Eu_2O_3)/M(Y_2O_3) \leq 0.2$  и  $M(Eu_2O_3+Y_2O_3)/M(Nb_2O_5) \sim 1$ .

Первое соотношение определяется оптимальной концентрацией  $Eu$  в матрице ниобата иттрия, при которой наблюдается максимальная интенсивность излучения  $Eu$  [1]. Второе соотношение выбрано таким образом, чтобы в результате синтеза керамики в ней образовался кристаллический  $YNbO_4$  из расплава [14]. Для формирования кристаллитов в материале на завершающей стадии синтеза образцы медленно охлаждались в муфельной печи. В качестве исходных компонентов для варки стекол использовали реактивы чистотой не ниже 99%.

### Образец SiNaK

Синтез кремний-натрий-калиевой стеклокерамики осуществлялся растворением в  $50 ml$  этилового спирта следующих соединений (в граммах):  $Eu(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$  ( $4.5 g$ ),  $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$  ( $18.9 g$ ),  $NbCl_5$  ( $16.5 g$ ),

$KCl$  ( $5.5 g$ ),  $NaCl$  ( $6.6 g$ ),  $SiO_2$  ( $70.5 g$ ). Вместо стеклообразующих оксидов были использованы их хлориды и нитраты для снижения температуры формирования кремний-натрий-калиевой матрицы. Полученный раствор перемешивали и высушивали при  $100^\circ C$  до испарения спиртовой составляющей. Полученный порошок помещали в керамический тигель и нагревали в муфельной печи SNOL 6.7/1300 в следующем режиме: поэтапный нагрев до  $1150^\circ C$  в течение  $2.5 h$ , выдержка при  $1150^\circ C$  ( $1 h$ ) и постепенное охлаждение (около  $4 h$ ) до комнатной температуры.

### Образец BNa

Синтез натрий-боратной стеклокерамики осуществлялся следующим образом: к тетраборату натрия добавлялись следующие оксиды:  $Y_2O_3$  ( $11.7 wt. \%$ ),  $Nb_2O_5$  ( $16.8 wt. \%$ ) и  $Eu_2O_3$  ( $3.6 wt. \%$ ), затем компоненты перемешивали, растворяли в азотной кислоте и подогревали смесь на нагревательной плитке до полного удаления жидкой фазы. Полученная смесь измельчалась на микромельнице FRITSCHE Pulverisette и помещалась в керамический тигель. Термообработка производилась в муфельной печи SNOL 8.2/1100 на воздухе и включала в себя нагрев до  $950^\circ C$  в течение  $1 h$ , выдержку при  $950^\circ C$  ( $30 min$ ) и постепенное охлаждение (около  $3.5 h$ ) до комнатной температуры в керамическом тигле.

После синтеза образцы шлифовали и полировали. Для обеспечения стока заряда на образцы напылялась углеродная пленка методом термического распыления с использованием вакуумного универсального поста JEE-4C (JEOL, Япония).

### Образец YNbO<sub>4</sub>(Eu)

Для сравнения люминесцентных свойств полученных образцов в работе использовался микронный монофазный кристаллический порошок  $M-YNbO_4:Eu^{3+}$  с концентрацией  $Eu$   $5.3 at. \%$  по  $Y$ . Синтез, детальное исследование структуры и спектроскопических свойств образца представлены в работе [1].

## Методы исследования

Однородность образцов и наличие включений исследовались в оптическом микроскопе КЛ-системы. Для определения элементного состава образцов использовался метод РСМА. Люминесцентные свойства исследовались методом КЛ. Наличие, структура и размер кристаллических включений в образцах определялись методом РДФА, а также по спектроскопическим характеристикам переходов  $Eu^{3+}$  в материале.

Для исследования образцов методами КЛ и РСМА использовался электронно-зондовый микроанализатор CAMEBAX (Camesa, Франция), совмещенный с КЛ-станцией оригинальной конструкции [15]. РДФА-исследования проводились на рентгеновском дифрактометре D2 Phaser (Bruker, Германия).

Метод КЛ позволяет получать спектры с латеральным разрешением от  $1 \mu m$ , что позволяет исследовать

однородность люминесцентных свойств образцов. Метод также дает возможность получать КЛ-изображения образцов, по которым можно оценить однородность КЛ-образца и размеры включений от  $1\ \mu\text{m}$ . Спектры КЛ были получены при ускоряющем напряжении электронов 20 kV, поглощенном токе 20 nA и диаметре электронного пучка  $3\ \mu\text{m}$ . При таком ускоряющем напряжении область генерации КЛ имеет глубину порядка  $3\ \mu\text{m}$ . КЛ-изображения были получены при диаметре электронного пучка  $200\ \mu\text{m}$ , ускоряющем напряжении электронов 20 kV и поглощенном токе 100 nA.

Локальность метода РСМА так же, как и метода КЛ, может варьироваться в диапазоне от 1 до  $200\ \mu\text{m}$ . Измерение состава образцов проводилось при ускоряющем напряжении электронов 20 kV, поглощенном токе 15 nA и диаметре электронного пучка  $4\ \mu\text{m}$ . В качестве эталонов использовались соединения  $EuPO_4$ ,  $SiO_2$ , Nb,  $Na_8Cl_2AlSiO_4$ ,  $K_8Cl_2AlSiO_4$  и  $Y_3Al_5O_{12}$ . Содержание кислорода рассчитывалось по стехиометрии. Содержание оксида бора не измерялось, оно рассчитывалось как разность между 100% и суммой остальных оксидов. Для каждого образца было проведено не менее пяти анализов состава матрицы в случайных областях. Это позволило получить усредненный элементный состав и оценить однородность распределения элементов в образцах.

Так как исследования методами КЛ и РСМА проводятся на одном приборе, имеется возможность анализировать состав и регистрировать спектры КЛ в одной и той же области образца. Это упрощает интерпретацию контраста КЛ-изображений.

## Результаты и обсуждение

### КЛ-изображения

На рис. 1 показаны КЛ-изображения образцов  $SiNaK$  (a),  $BNa$  (b) и  $YNbO_4(Eu)$  (c). Стоит отметить, что более яркие области КЛ-изображений соответствуют участкам образцов с более интенсивной люминесценцией.

#### Образец $SiNaK$

На КЛ-изображениях образцов  $SiNaK$  (рис. 1, a) наблюдается цветовой контраст, характерный для микронных и субмикронных включений. Как видно, в образце  $SiNaK$  наблюдаются два типа включений. Первый тип включений обладает значительно более интенсивной КЛ в красном оптическом диапазоне, чем окружающая матрица, и обозначен на рис. 1, a стрелкой. Такие включения встречаются крайне редко (менее 1% от исследуемой области образца). Второй тип включений на рис. 1, a имеет темный цветовой контраст. Это свидетельствует о малой интенсивности КЛ-включений по сравнению с остальными областями образца.

#### Образец $BNa$

На КЛ-изображениях образцов  $BNa$  (рис. 1, b), также наблюдается цветовой контраст, характерный для мик-

**Таблица 1.** Состав образца  $SiNaK$ , mol%

Компоненты	$SiO_2$	$Na_2O$	$K_2O$	$Nb_2O_5$	$Y_2O_3$	$Eu_2O_3$
Состав шихты	88.8	4.3	2.8	2.1	1.7	0.3
Состав матрицы*	94.2	2.0	3.3	2.0	1.5	0.2
Состав включений 1*	—	—	—	49.3	43.5	7.2
Состав включений 2*	100	—	—	—	—	—

Примечание. \* — относительная погрешность составляет менее 5% от измеряемой величины.

**Таблица 2.** Состав образца  $BNa$ , mol%

Компоненты	$B_2O_3$	$Na_2O$	$Nb_2O_5$	$Y_2O_3$	$Eu_2O_3$
Состав шихты	59.3	29.7	5.6	4.6	0.9
Состав матрицы*	81.9	15.7	1.3	1.0	0.1
Состав включений*	—	—	49.8	40.9	9.4

Примечание. \* — относительная погрешность составляет 5% от измеряемой величины.

ронных и субмикронных включений. В образце  $BNa$  включения наблюдаются на значительной части исследуемой области образца и обладают интенсивной КЛ в красном оптическом диапазоне.

#### Образец $YNbO_4(Eu)$

На КЛ-изображении образца  $YNbO_4(Eu)$  (рис. 1, c) наблюдался слабый цветовой контраст, связанный с неоднородностью углеродного напыления и морфологией поверхности.

### РСМА-исследования

Результаты измерений шихты и состава образцов представлены в табл. 1 и 2. Состав шихты был рассчитан на основании взвешивания компонентов, которые спекались в тиглях. Средний состав матрицы и включений был определен методом РСМА.

#### Образец $SiNaK$

В табл. 1 указаны составы шихты, матрицы и микронных включений образца  $SiNaK$  в пересчете на оксиды в mol%. Видно, что состав аморфной матрицы образца  $SiNaK$  отличается от состава шихты, это связано с различной скоростью улетучивания компонентов шихты, а также выпадением включений, что уменьшает концентрацию оксидов  $Eu$ ,  $Y$  и  $Nb$  в аморфной матрице.

Был измерен состав двух типов включений в образце  $SiNaK$ , представленных на рис. 1, a. Состав включений, обладающих интенсивной КЛ и отмеченных стрелкой на рис. 1, a, стехиометрически соответствует ортониобату иттрия  $Y_{1-x}Eu_xNbO_4$ . Состав включений второго типа с учетом погрешности приближается к чистому  $SiO_2$ .

#### Образец $BNa$

В табл. 2 указаны состав шихты, матрицы и микронных включений образца. Так же, как и в предыдущем образце, состав аморфной матрицы и шихты отличаются из-за выпадения кристаллических включений и различной скорости улетучивания компонентов шихты.

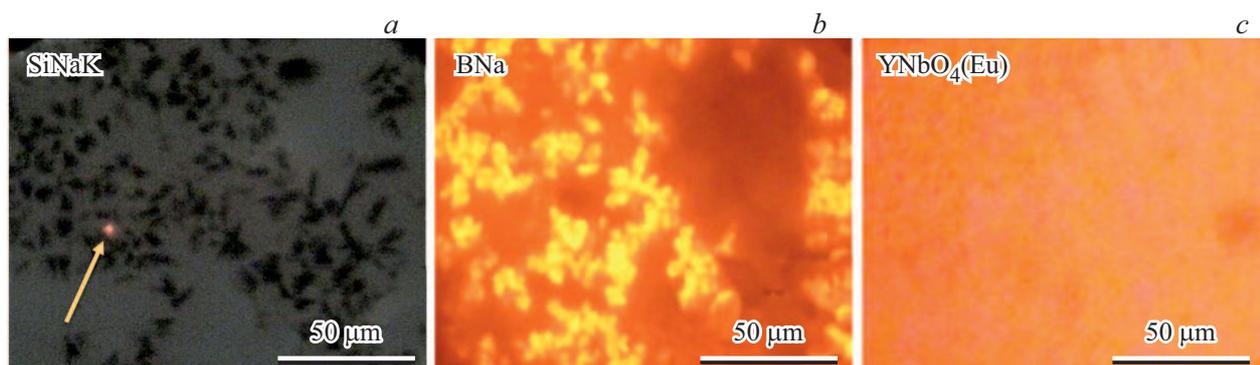


Рис. 1. КЛ-изображения образцов: SiNaK (a), BNa (b) и  $\text{YNbO}_4(\text{Eu})$  (c).

Состав включений в образце BNa стехиометрически соответствует ортониобату иттрия  $\text{Y}_{1-x}\text{Eu}_x\text{NbO}_4$ .

### РДФА-исследования

Результаты РДФА образцов SiNaK и BNa представлены на рис. 2 и в табл. 3. Показано, что в каждом из образцов содержатся кристаллические составляющие. Относительный процент кристаллической составляющей в образце рассчитывался как соотношение площадей под кривой дифракционных максимумов и „гало“ с вычетом фона. Данная величина приближена к соотношению масс аморфной и кристаллической составляющих образца.

#### Образец SiNaK

Расшифровка дифракционной кривой образца SiNaK (рис. 2, a) показала наличие кристаллических фаз  $\text{M-YNbO}_4$ ,  $\text{SiO}_2$  кварц,  $\text{SiO}_2$  кристаболит и  $\text{SiO}_2$  тридимит. Средний размер кристаллитов и относительный процент кристаллической фазы в образце представлены в табл. 3. Широкое „гало“ на дифракционной кривой в диапазоне  $15\text{--}35^\circ$  на шкале  $2\theta$  углов характерно для стекла.

#### Образец BNa

На дифракционной кривой образца BNa (рис. 2, b) была идентифицирована фаза  $\text{M-YNbO}_4$ , что также соответствует данным PCMA. На дифракционной кривой также отчетливо видны широкие „гало“ в диапазоне  $15\text{--}25^\circ$ ,  $25\text{--}35^\circ$  и  $40\text{--}55^\circ$   $2\theta$  углов, характерные для стекла (рис. 2, b, вставка). Таким образом, данный образец является стеклом с включениями  $\text{M-YNbO}_4$ .

Размер кристаллитов во всех образцах по данным РДФА составляет от 45 до 100 nm (табл. 3). Наблюдаемые формы „гало“ различаются для двух исследованных образцов. Это объясняется тем, что в образцах SiNaK и BNa разные стеклообразователи —  $\text{SiO}_2$  и  $\text{B}_2\text{O}_3$  соответственно.

### КЛ-исследования

#### Образец $\text{YNbO}_4(\text{Eu})$

На рис. 3, a представлен КЛ-спектр образца  $\text{YNbO}_4(\text{Eu})$  в полулогарифмическом масштабе. Узкие

Таблица 3. РДФА анализ кристаллической фазы образцов

Образец	Идентифицированная кристаллическая фаза	Размеры кристаллитов, nm	Содержание кристаллической компоненты, %
SiNaK	$\text{SiO}_2$ -Кварц	$100 \pm 10$	1–3
	$\text{SiO}_2$ -Кристаболит	–	2–3
	$\text{SiO}_2$ -М-Тридимит	$50 \pm 5$	7–10
BNa	M- $\text{YNbO}_4$	$45 \pm 5$	~ 0.5
	M- $\text{YNbO}_4$	$45 \pm 5$	$47 \pm 5$

полосы люминесценции соответствуют излучению  $\text{Eu}^{3+}$ . На КЛ-спектре рис. 3, a обозначены переходы, соответствующие люминесценции  $\text{Eu}^{3+}$ . Расшифровка переходов проводилась по литературным данным [1,2] и диаграмме Дике оптических переходов Eu. Наиболее интенсивные переходы наблюдаются с уровней  ${}^5D_0$  и  ${}^5D_1$ . Кроме них в спектре наблюдаются полосы люминесценции, соответствующие переходам с уровней  ${}^5D_2$  и  ${}^5D_3$  и располагающиеся в сине-зеленом спектральном диапазоне. Их интенсивность невелика, и в литературе данных по их расшифровке не найдено. Самая интенсивная линия люминесценции 612 nm соответствует переходу  ${}^5D_0\text{--}{}^7F_2$ . Стоит отметить, что спектры, показанные на рис. 3, имеют одинаковую форму, поэтому длины волн отмеченных полос люминесценции на рис. 3, b характерны и для спектров на рис. 3, a, c.

#### Образец SiNaK

На рис. 3, b показан характерный спектр включений в образце SiNaK, имеющих интенсивную люминесценцию. Сравнительный анализ спектров (рис. 3, a и b) показал, что тонкая структура линий люминесценции  $\text{Eu}^{3+}$ , характерная для данных включений, полностью совпадает со структурой спектра  $\text{M-YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$  (рис. 3, a). Это согласуется с данными, полученными методами РДФА и PCMA, и подтверждает, что в образце формируются включения  $\text{M-YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$ .

Не удалось получить спектры включений, имеющих темный цветовой контраст на рис. 1, a и состав, близкий

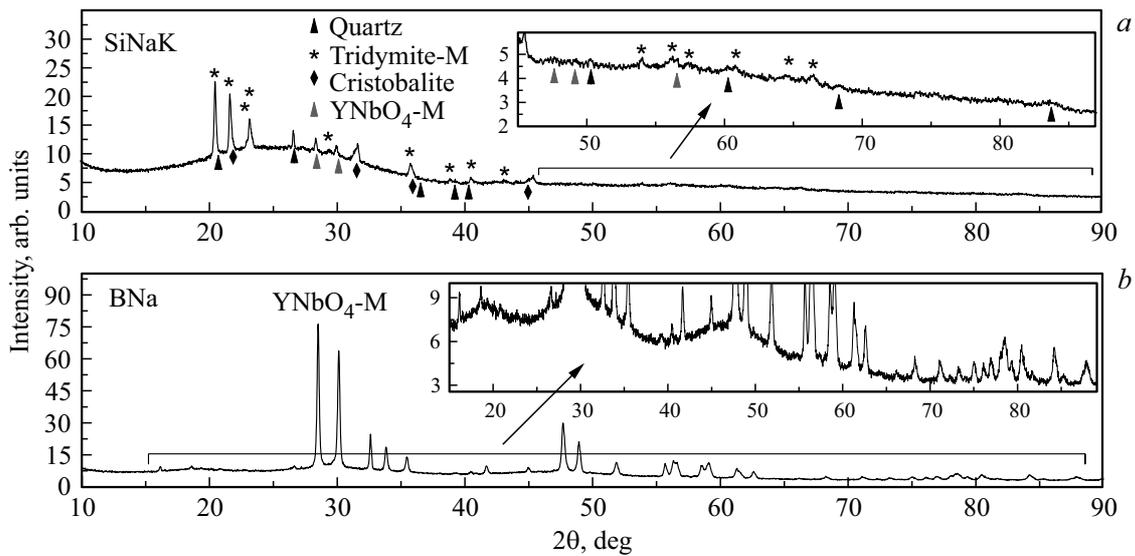


Рис. 2. Рентгеновские дифрактограммы образцов: SiNaK (a), BNa (b).

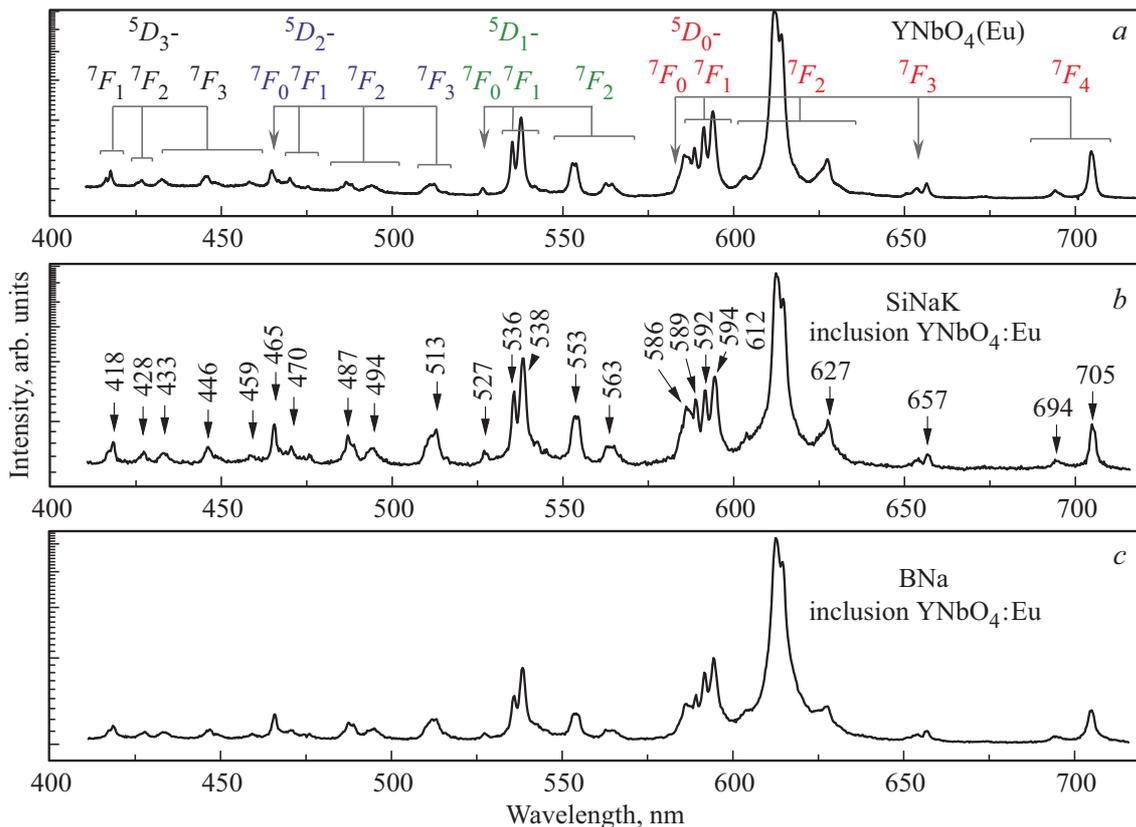


Рис. 3. (a) КЛ-спектры образца  $YNbO_4(Eu)$ ; КЛ-спектры включений  $YNbO_4:Eu^{3+}$ , наблюдаемых в образцах SiNaK (b), BNa (c). Положение полос на рис. 3, b указано в nm. Формы спектров на рис. 3, a, b, c фактически совпадают.

к чистому  $SiO_2$ . Это связано с тем, что данные включения имеют крайне низкую интенсивность люминесценции.

На рис. 4, a показан характерный спектр матрицы (вне включений) образца SiNaK. В КЛ-спектрах также

проявляются полосы люминесценции, связанные с  $Eu^{3+}$ , и широкая полоса с максимумом около 460 nm.

Известно, что в аморфных оксидных материалах на основе  $SiO_2$  и  $B_2O_3$  редкоземельные трехвалентные ионы, в том числе  $Eu^{3+}$ , занимают локальные позиции,

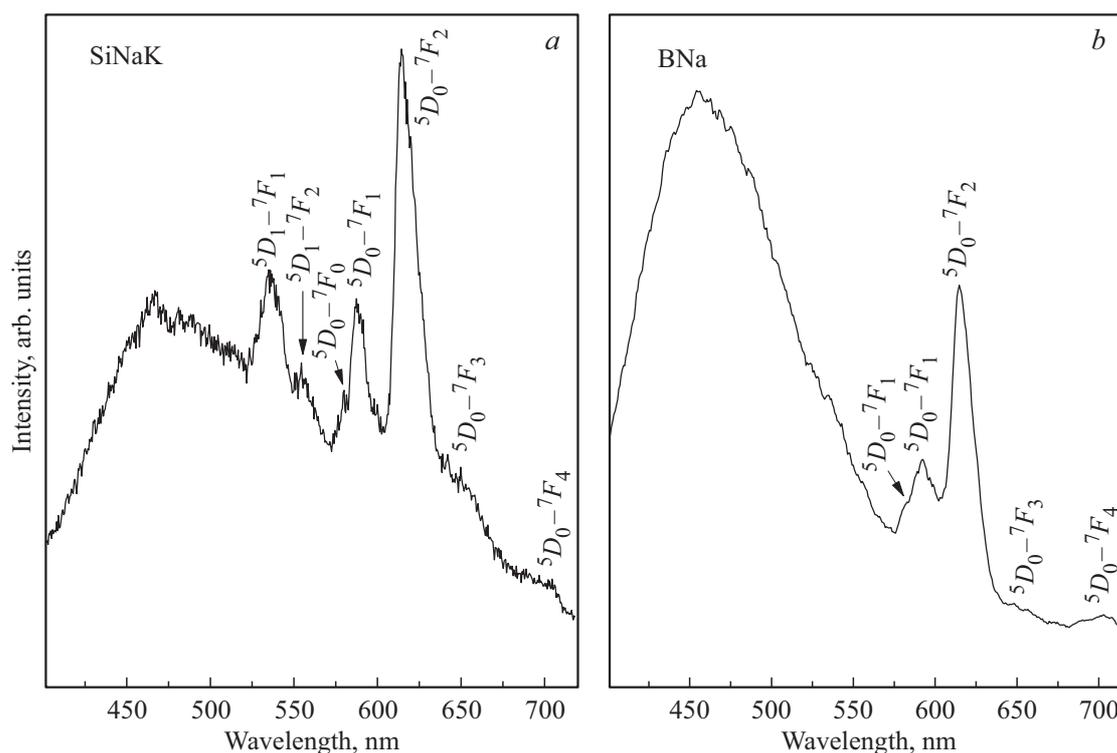


Рис. 4. КЛ-спектры матрицы образцов: SiNaK (a), BNa (b).

близкие к  $C_{2v}$ . При этом люминесценция  $\text{Eu}^{3+}$  в данных материалах имеет характерную форму спектра, подробно изученную в работах [16–20]. При детальном рассмотрении полос  $\text{Eu}^{3+}$  в спектрах матрицы SiNaK (рис. 4, a), было выявлено, что в них присутствуют дополнительные полосы в области переходов  ${}^5D_0-{}^7F_1$ ,  ${}^5D_1-{}^7F_1$  и  ${}^5D_1-{}^7F_2$ , не характерные для аморфных соединений на основе  $\text{SiO}_2$  [16–20]. Это может свидетельствовать о том, что часть кристаллитов, вероятно, распределена по всему образцу и вносит дополнительный вклад в люминесценцию. Однако достоверно определить, какие именно кристаллиты дают вклад в люминесценцию матрицы, по спектрам крайне сложно, и это требует дополнительных исследований.

#### Образец BNa

На рис. 3, c показан характерный спектр включений образца BNa. Сравнительный анализ спектров (рис. 3, a и c) показал, что структура линий люминесценции  $\text{Eu}^{3+}$ , характерная для данных включений, полностью совпадает со структурой спектра  $\text{M-YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$  (рис. 3, a). Это также согласуется с данными, полученными методами РДФА и РСМА.

На рис. 4, b показан спектр матрицы. В КЛ-спектрах матрицы проявляются полосы люминесценции, связанные с  $\text{Eu}^{3+}$ , и широкая полоса с максимумом около 460 nm. При рассмотрении полос  $\text{Eu}^{3+}$  с уровня  ${}^5D_0$  можно установить, что спектр характерен для аморфных оксидных соединений, где  $\text{Eu}^{3+}$  занимает позиции преимущественно близкие к  $C_{2v}$  [17–20].

Стоит отметить, что на рис. 3 и 4 наблюдаются широкие полосы в синем спектральном диапазоне с максимумом около 460 nm. Данные полосы, вероятно, связаны с люминесцентными центрами, ассоциированными с точечными дефектами в широкозонных оксидных материалах [21].

## Выводы

Были синтезированы низкотемпературные стеклокерамики на основе кремний-натрий-калиевой (SiNaK) и натрий-боратной (BNa) матриц. В синтезированных образцах, обнаружено, что в матрице SiNaK кристаллизовались  $\text{YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$  и  $\text{SiO}_2$  кварц,  $\text{SiO}_2$  кристаболит и  $\text{SiO}_2$  тримит. В матрице BNa кристаллизовался только  $\text{YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$ . Это подтверждается данными РСМА, КЛ и РДФА. При этом содержание  $\text{YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$  в матрицах SiNaK и BNa составляет  $\sim 0.5\%$  и  $47 \pm 5\%$  соответственно. Таким образом, натрий-борная матрица является перспективной для низкотемпературного синтеза стеклокерамики с  $\text{YNbO}_4:\text{Eu}^{3+}$ .

## Благодарности

Авторы выражают благодарность М.А. Яговкиной за РДФА-исследования.

РДФА-исследования выполнены с использованием оборудования федерального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ и поддержаны

Минобрнауки России (Уникальный идентификатор проекта RFMEFI62119X0021).

### Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и БРФФИ в рамках научного проекта № 19-52-04011 и при поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (проект Т19PM-030).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] Местер А.Ю., Можаров А.М., Трофимов А.Н., Заморянская М.В. // Опт. и спектр. 2016. Т. 120. № 5. С. 768; Mester A.Y., Mozharov A.M., Trofimov A.N., Zamoryanskaya M.V. // Opt. Spectrosc. 2016. V. 120. P. 726. doi 10.1134/S0030400X16050192
- [2] Nazarov M., Kim Y.J., Lee E.Y., Min K.I., Jeong M.S., Lee S.W., Noh D.Y. // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. P. 103104. doi 10.1063/1.3392918
- [3] Dačanić L.R., Lukić-Petrović S.R., Petrović D.M., Nikolić M.G., Dramićanin M.D. // J. Lumin. 2014. V. 151. P. 82. doi 10.1016/j.jlumin.2014.02.008
- [4] Blasse G., Brill A. // J. Electrochem. Soc. 1968. V. 115. P. 1067.
- [5] Blasse G., Brill A. // J. Lumin. 1970. V. 3. N 2. P. 109. doi 10.1016/0022-2313(70)90011-6
- [6] Dymshits O.S., Alekseeva I.P., Zhilin A.A., Tsenter M.Y., Loiko P.A., Skoptsov N.A., Malyarevich A.M., Yumashev K.V., Mateos X., Baranov A.V. // J. Lumin. 2015. V. 160. P. 337. doi 10.1016/j.jlumin.2014.12.040
- [7] Loiko P.A., Dymshits O.S., Alekseeva I.P., Zhilin A.A., Tsenter M.Y., Vilejshikova E.V., Bogdanov K.V., Mateos X., Yumashev K.V. // J. Lumin. 2016. V. 179. P. 64. doi 10.1016/j.jlumin.2016.06.042
- [8] Hirano M., Dozono H. // Mater. Res. Bull. 2014. V. 50. P. 213. doi 10.1016/j.materresbull.2013.10.041
- [9] Ding S., Peng F., Zhang Q., Luo J., Liu W., Sun D., Dou R., Sun G. // Opt. Mater. 2016. V. 62. P. 7. doi 10.1016/j.optmat.2016.09.032
- [10] Kim K.-Y., Durand A., Heintz J.-M., Veillere A., Jubera V. // J. Solid State Chem. 2016. V. 235. P. 169. <https://doi.org/10.1016/j.jssc.2015.12.023>
- [11] Massabni A.M.G., Montandon G.J.M., dos Santos M.A.C. // Mater. Res. 1998. V. 1. P. 1. doi 10.1590/S1516-14391998000100002
- [12] Ivanova E.V., Kravets V.A., Orekhova K.N., Gusev G.A., Popova T.B., Yagovkina M.A., Bogdanova O.G., Burakov B.E., Zamoryanskaya M.V. // J. Alloys Compd. 2019. V. 808. P. 151778. doi 10.1016/j.jallcom.2019.151778
- [13] Кравец В.А., Орехова К.Н., Яговкина М.А., Иванова Е.В., Заморянская М.В. // Опт. и спектр. 2018. Т. 125. № 2. С. 180; Kravets V.A., Orekhova K.N., Yagovkina M.A., Ivanova E.V., Zamoryanskaya M.V. // Opt. Spectrosc. 2018. V. 125. P. 188. doi 10.1134/S0030400X18080167
- [14] Галахов Ф.Я. Диаграммы состояния систем тугоплавких оксидов. Справочник. В. 5. Ч. 2. М.: Наука, 1986. 284 с.
- [15] Zamoryanskaya M.V., Konnikov S.G., Zamoryanskii A.N. // Instrum. Exp. Tech. 2004. V. 47. P. 477. doi 10.1023/B:INET.0000038392.08043.d6
- [16] Malashkevich G.E., Makhanev A.G., Semchenko A.V., Gaishun V.E., Mel'nichenko I.M., Poddenezhnyi E.N. // Phys. Solid State. 1999. V. 41. P. 202. doi 10.1134/1.1130755
- [17] Nogami M., Abe Y. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71. P. 3465. doi 10.1063/1.120361
- [18] You H., Nogami M. // J. Appl. Phys. 2004. V. 95. P. 2781. doi 10.1063/1.1646433
- [19] Kravets V.A., Ivanova E.V., Orekhova K.N., Petrova M.A., Gusev G.A., Trofimov A.N., Zamoryanskaya M.V. // J. Lumin. 2020. P. 117419. doi 10.1016/j.jlumin.2020.117419
- [20] Rodríguez V.D., Lavín V., Rodríguez-Mendoza U.R., Martín I.R., Nuñez P. // Radiat. Eff. Defects Solids. 1995. V. 135. N 1-4. P. 105. doi 10.1080/10420159508229816
- [21] Иванова Е.В., Заморянская М.В. // ФТТ. 2016. Т. 58. № 10. С. 1895; Ivanova E.V., Zamoryanskaya M.V. // Phys. Solid State. 2016. V. 58. P. 1962. doi 10.1134/S1063783416100188