ФЛУОРЕСЦЕНЦИЯ И ФОТОГЕНЕРАЦИЯ

# Исследование оптического поглощения и фотолюминесценции в эпитаксиальных пленках (Pb,Gd)<sub>3</sub>(Al,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce, выращенных из содержащих Pb растворов-расплавов

## Д.А.Васильев, Д.А.Спасский, С.И.Омельков, Н.В.Васильева, А.В.Хахалин, В.Г.Плотниченко

Исследованы оптическое поглощение и фотолюминесцентные свойства активированных церием эпитаксиальных пленок  $(Pb,Gd)_3(Al,Ga)_5O_{12}$ , выращенных на монокристаллических Gd3Ga5O12-подложках с ориентацией (111) методом жидкофазной эпитаксии из переохлажденных растворов-расплавов  $PbO-B_2O_3$  при различных концентрациях оксидов гадолиния, церия и алюминия в шихте. Показано, что максимальную интенсивность фотолюминесценции ионов  $Ce^{3+}$  на длине волны излучения 532 нм и максимальный световыход катодолюминесценции около 51500 фотон./МэВ при времени затухания медленной компоненты 61.0 нс (доля выхода излучения 68%) имеет пленка  $Pb_{0.01}Ce_{0.03}Gd_{2.96}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$ , выращенная из раствора-расплава при концентрациях оксида гадолиния 0.4 мол. %, оксида церия 0.2 мол. % и оксида алюминия 4.5 мол. % в шихте. Эпитаксиальные пленки с такими спектроскопическими характеристиками перспективны для использования в качестве сцинтилляционных экранов.

Ключевые слова: оптическое поглощение, люминесценция, эпитаксиальные пленки, гранат, церий.

## 1. Введение

В связи с развитием техники получения микроизображений с помощью жестких рентгеновских лучей появилась возможность использовать в качестве сцинтилляционных экранов эпитаксиальные пленки, выращенные методом жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ). Такие пленки должны иметь высокий световыход, низкое послесвечение, высокое оптическое качество, высокую химическую стабильность и толщину не более 20 мкм; спектр излучения должен находиться в интервале 400-700 нм для согласования с ССД-камерой. В качестве такого экрана исследовались эпитаксиальные пленки Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>: Tb, Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Еи и Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Еи [1]. Методом визуализации рентгеновских изображений (SSED) продемонстрирована возможность успешного использования эпитаксиальной пленки Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>: Тb и STED-лазера, излучающего на длине волны  $\lambda = 628$  нм [2]. STED-лазер используется для подавления спонтанного излучения (STED) и достижения разрешения микроскопа выше дифракционного предела при помощи избирательного тушения фотолюминесценции. Среди кристаллов граната максимальным световыходом обладает монокристалл Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>: Се (1 ат. %) (GAGG: Ce). В настоящее время двухдюймовый

Д.А.Васильев, Н.В.Васильева. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: natasha\_v@lst.gpi.ru

С.И.Омельков. Институт физики Тартуского университета, Эстония, 50411 Тарту, ул. В.Освальда, 1; e-mail: omelkovs@gmail.com А.В.Хахалин. Московский государственный университет им. М.В.Ло-

моносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы;

e-mail: avkhakhalin@mail.ru

В.Г.Плотниченко. Научный центр волоконной оптики РАН, Россия, 119333 Москва, ул. Вавилова, 38

Поступила в редакцию 13 марта 2017 г., после доработки – 6 июня 2017 г.

монокристалл GAGG: Се, выращенный методом Чохральского, продемонстрировал максимальный световыход около 58 000 фотон./МэВ [3]. Сцинтилляционное время затухания люминесценции быстрой компоненты в этом кристалле составляет 172 нс (доля выхода излучения  $\eta =$ 88%) на  $\lambda = 516$  нм. Время затухания уменьшается при введении в состав монокристалла Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>: Се (0.5 ат. %) двухвалентных ионов Са или Мg [4]. Введение Мд приводит к уменьшению времени затухания до 39.5 нс  $(\eta = 55\%)$  при незначительном уменьшении световыхода. Это уменьшение авторы статьи [4] связывают с образованием Се<sup>4+</sup>-центров, которые выполняют роль центров захвата электронов из зоны проводимости с последующим быстрым излучением. Влияние Се4+-центров на интенсивность люминесценции и время затухания люминесценции изучалось как в монокристаллах гранатов [5], так и в монокристаллических пленках Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>: Се и Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>: Се, выращенных методом ЖФЭ из содержащего PbO расплава [6].

Хорошими сцинтилляционными свойствами обладают гранатовые пленки GAGG: Се, выращенные методом ЖФЭ из переохлажденного раствора-расплава при концентрациях оксида гадолиния и оксида церия 0.2 мол. %, оксида алюминия 2.0 мол. % в шихте [7], а пленки, выращенные из раствора-расплава при концентрациях оксида гадолиния 0.4 мол. %, оксида церия 0.3 мол. % и оксида алюминия 4.5 мол. %, нашли применение в качестве люминофоров в электронно-оптическом преобразователе типа ПИФ-01 [8]. Авторы статьи [9] показали, что монокристаллические пленки Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> и Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> гранатов, выращенные методом ЖФЭ из растворов-расплавов PbO-**B**<sub>2</sub>**O**<sub>3</sub> в платиновых тиглях, обладают рядом уникальных преимуществ перед объемными монокристаллами. Эти преимущества обусловлены отсутствием ряда дефектов кристаллической структуры, которые характерны для монокристаллов, выращиваемых при более высоких температурах. Однако при синтезе эпитаксиальных пленок из растворов-расплавов РbO-В2O3 в состав пленки в ка-

Д.А.Спасский. НИИ ядерной физики им. Д.В.Скобельцына МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119234 Москва, Воробьевы горы;

честве примеси входят компоненты растворителя: ионы  $Pb^{2+}$ ,  $Pb^{4+}$  [7], а также ионы  $Pt^{4+}$ , возникшие в результате растворения платинового тигля. Концентрацией этих примесных ионов можно управлять, изменяя температуру роста пленок. Например, можно избежать вхождения в состав пленки связанных пар ионов Pb<sup>2+</sup> и Pb<sup>4+</sup>, но не изолированных ионов Pb<sup>2+</sup> [7, 10], которые способствуют образованию Се4+-центров.

В настоящей работе приведены результаты исследования оптического поглощения и фотолюминесценции в эпитаксиальных пленках (Pb,Gd)<sub>3</sub>(Al,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се с целью определения состава раствора-расплава, при выращивании из которого пленки имеют максимальную фотолюминесценцию и световыход.

# 2. Эксперимент

Пленки (Pb,Gd)<sub>3</sub>(Al,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се размером 10 × 15 мм были выращены методом ЖФЭ, описанным в [7], из переохлажденных растворов-расплавов PbO-B2O3 при концентрациях *C*(Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) = 0.2, 0.3, 0.4 и 0.5 мол. %, *C*(CeO<sub>2</sub>) = 0.2 и 0.3 мол. % и C(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) = 2.1, 4.0 и 4.5 мол. % в шихте (табл.1). В качестве подложек использовались монокристаллические подложки гадолиний-галлиевого граната ( $Gd_3Ga_5O_{12}$ ) толщиной 500 мкм, ориентированные по направлению (111). Время роста эпитаксиальных пленок составляло 5 -210 мин, скорость вращения подложки была равна 50 или 132 об./мин.

Суммарная толщина 2*h* пленок, выращенных на обеих сторонах подложки, определялась методом взвешивания. При ее расчете пренебрегали различием в плотностях выращенной пленки и подложки. Химический состав пленок определялся при помощи электрон-ионного сканирующего микроскопа Quanta 3D FEG (FEI, США). Спектры пропускания образцов (пленка-подложка-пленка) измерялись спектрофотометром Lambda 900 (Perkin-Elmer, США) при 300 К в диапазоне длин волн 200-600 нм. Спектры нормализованной оптической плотности (D/2h) рассчитывались из спектров пропускания по формуле D = $\ln(T_{\rm sub}/T_{\rm sam})$ , где  $T_{\rm sub}$  и  $T_{\rm sam}$ – пропускания подложки и образца в зависимости от длины волны соответственно. Спектры фотолюминесценции пленок измерялись при 300 К в области 400-700 нм при возбуждении дейтериевой лампой Heraeus D 200 VUV на  $\lambda$  = 165 нм (7.5 эВ) с использованием ФЭУ Hamamatsu H8259. Спектры возбуждения фотолюминесценции были получены при 300 К с помощью той же лампы в области 260-500 нм на  $\lambda$  = 540 нм (2.29 эВ). Измерения люминесцентных характеристик проводились с использованием двух монохроматоров: первичного - McPherson Model 234/302, и вторичного - Andor Shamrock 303i. Кинетика затухания катодолюминесценции ионов церия измерялась с интервалом 5 нм в диапазоне 400-700 нм при 300 К на установке импульсной катодолюминесценции [11] с использованием электронной пушки Радан-303А с полихроматическим пучком 80 < *E*<sub>e</sub> < 120 кэВ (де-бройлева длина волны от 3.5 до 4.2 пм) и длительностью одиночного импульса 300 пс. Регистрация осуществлялась фотоумножителем Hamamatsu R3809U-50 и осциллографом LeCroy WavePro760Zi-A. Измеренные кривые затухания катодолюминесценции пленок аппроксимировались суммой трех экспонент: I(t) = $A_1 \exp(-t/\tau_1) + A_2 \exp(-t/\tau_2) + A_3 \exp(-t/\tau_3)$ , где  $A_i$  – амплитуды кривых;  $\tau_i$  – компоненты времени затухания ( $A_1$  – быстрая,  $\tau_2$  – средняя,  $\tau_3$  – медленная, i = 1, 2, 3); доля каждой компоненты в общем выходе излучения рассчитывалась по формуле  $A_i \tau_i / (A_1 \tau_1 + A_2 \tau_2 + A_3 \tau_3) \times 100\%$ .

Значения относительного световыхода для выращенных пленок при электронном возбуждении сравнивались со световыходом монокристаллических образцов Lu<sub>1.8</sub>Y<sub>0.2</sub>SiO<sub>5</sub>: Ce (LYSO: Ce) и CeF<sub>3</sub>, обладающих световыходом ~27000 фотон./МэВ [12] и 4500 фотон./МэВ [13] соответственно, при возбуждении гамма-квантами с энергией 662 кэВ. Такой метод, скорее всего, дает несколько завышенные значения световыхода, т.к. не учитывает его непропорциональность энергии поглощенного кванта [14] при изменении энергии и типа излучения, однако позволяет достоверно сравнить пленки друг с другом. Для оценки световыхода выбраны пленки толщиной более 40 мкм, превышающей глубину проникновения электронного пучка, что обеспечивает полное поглощение энергии электронов в пленке, как и в монокристалле. В то же время световыход пленок при рентгеновском возбуждении может быть меньше из-за большей глубины проникновения рентгеновского излучения.

### 3. Результаты и их обсуждение

Было выращено 33 образца эпитаксиальных пленок (Pb,Gd)<sub>3</sub>(Al,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Се из растворов-расплавов шести различных составов. Для каждого состава раствора-расплава в табл.1 приведены значения максимальной толщины  $h_{\max}$  пленок и максимальной скорости роста  $f_{g}^{\max}$ , наблюдавшиеся в экспериментах. Следует отметить, что при увеличении концентрации  $C(Gd_2O_3)$  с 0.2 до 0.5 мол. % в растворе-расплаве наблюдалось увеличение температуры насыщения на 134°С и скорости роста пленок на 0.88 мкм/мин.

В спектральных зависимостях нормализованной оптической плотности пленок толщиной *h* < 15 мкм наблюдаются три полосы поглощения. Первая полоса с максиму-

Номер аствора- расплава	<i>С</i> (Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) (мол. %)	С(CeO <sub>2</sub> ) (мол. %)	<i>С</i> (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) (мол. %)	δt (°C)	$\Delta t$ (°C)	$h_{\max}$ (мкм)	$f_{ m g}^{ m max}$ (мкм/мин)
Ι	0.2	0.2	2.1	956-935	11-30	20.9	0.34
II	0.2	0.2	4.0	1013-1010	2-24	43.0	0.54
III	0.3	0.2	4.5	1057-1049	3-50	51.6	0.52
IV	0.4	0.2	4.5	1093-1065	17-76	90.8	1.44
V	0.4	0.3	4.5	1075-1065	5-25	67.7	0.80
VI	0.5	0.2	4.5	1083-1076	4-45	73.0	1.22

Табл.1. Состав раствора-расплава и ростовые параметры эпитаксиальных пленок (Pb,Gd)<sub>3</sub>(Al,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се.

Примечание:  $\delta t$  – диапазон температур, в котором находится температура насыщения  $t_s$ ;  $\Delta t$  – температура переохлаждения;  $\Delta t = t_s - t_g$ , где t<sub>g</sub> – температура роста.

мом при 272.9 нм (4.5 эВ) соответствует, согласно [15], электронному переходу ионов Pb<sup>2+</sup> (6s<sup>2</sup>) (Pb<sup>2+</sup> (6s<sup>2</sup>, <sup>1</sup>S<sub>0</sub>)  $\rightarrow$  Pb<sup>2+</sup> (6s<sup>1</sup> 6p<sup>1</sup>, <sup>3</sup>P<sub>1</sub>)). Две другие широкие полосы поглощения в диапазонах 390–500 нм и 310–360 нм соответствуют межконфигурационным электронным переходам 4f (<sup>2</sup>F<sub>5/2,7/2</sub>)–5d ионов Ce<sup>3+</sup> (рис.1,*a*).

В спектральных зависимостях нормализованной оптической плотности пленок толщиной h > 20 мкм, выращенных из составов I, II и VI, наблюдаются только две полосы поглощения ионов Ce<sup>3+</sup> (рис.1, $\delta$ ). При увеличении отношения концентраций Al/Ga в пленке с 0.74 (рис.1, $\delta$ , кривая I) до 1.69 (кривая 2) наблюдается сдвиг полосы поглощения уровня Sd<sub>1</sub> на 5.8 нм в длинноволно-

вую часть спектра (см. также табл.2). Следует отметить уменьшение интенсивности полосы поглощения уровня 5d<sub>2</sub> в пленке VI-1 по сравнению с этой полосой в спектрах пленок I-1 и II-1 (рис.1,*6*, кривая *3*).

На рис.1, в представлены спектральные зависимости нормализованной оптической плотности пленок, выращенных из составов III, IV, V и VI. На спектрах наблюдаются те же полосы поглощения иона  $Ce^{3+}$  с уменьшением интенсивности полосы поглощения уровня  $5d_2$  для пленки VI-2 (рис.1, в, кривая l).

На рис.1, *е* представлены спектры поглощения пленок IV-4 и V-2, на которых видно увеличение поглощения в области до 360 нм. Такое же увеличение поглощения в



Рис.1. Спектры нормализованной оптической плотности *D*/2*h* эпитаксиальных пленок II-2 (*a*), I-1 (*1*), II-1 (2), VI-1 (3) (*б*) и VI-2 (*1*), V-1 (2), III-1 (3), IV-2 (*4*) (*в*), а также спектры поглощения эпитаксиальных пленок IV-4 (*1*), V-2 (*2*) (*c*) и VI-2 (*1*), IV-2 (*2*) (*d*) при *T* = 300 K (см.табл. 2).

Номер образца	Состав пленки	<i>h</i> (мкм)	$\Delta t$ (°C)	λ <sub>Ce</sub> (5d <sub>1</sub> ) (нм)	τ <sub>1</sub> /η (нс/%)	τ <sub>2</sub> /η (HC/%)	τ <sub>3</sub> /η (HC/%)	Световыход относительно LYSO:Се (фотон./МэВ)
I-1	Pb <sub>0.04</sub> Ce <sub>0.07</sub> Gd <sub>2.89</sub> Al <sub>2.13</sub> Ga <sub>2.87</sub> O <sub>12</sub>	20.9	21	438.7	_	_	_	_
II-1	$Pb_{0.01}Ce_{0.05}Gd_{2.94}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$	43.0	4	444.5	-	_	_	-
II-2	$Pb_{0.06}Ce_{0.1}Gd_{2.84}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$	5.2	2	444.5	-	_	_	-
III-1	$Pb_{0.01}Ce_{0.05}Gd_{2.94}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$	51.6	47	444.5	2.5/3	22.3/42	57.1/55	~19500
IV-1	$Pb_{0.01}Ce_{0.02}Gd_{2.97}Al_{3.13}Ga_{1.87}O_{12}$	43.3	20	443.5	-	-	_	-
IV-2	Pb <sub>0.01</sub> Ce <sub>0.03</sub> Gd <sub>2.96</sub> Al <sub>3.14</sub> Ga <sub>1.86</sub> O <sub>12</sub>	40.7	31	444.5	2.1/2	24.9/30	61.0/68	~51500
IV-3	$Pb_{0.01}Ce_{0.06}Gd_{2.93}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$	90.8	44	444.5	2.7/2	27.9/38	63.4/60	-
IV-4	$Pb_{0.01}Ce_{0.03}Gd_{2.96}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$	14.3	22	444.5	-	-	_	-
V-1	$Pb_{0.01}Ce_{0.04}Gd_{2.95}Al_{3.14}Ga_{1.86}O_{12}$	67.7	25	444.5	1.7/11	11.1/47	38.7/42	$\sim 27000$
V-2	$Pb_{0.01}Ce_{0.04}Gd_{2.95}Al_{3.13}Ga_{1.87}O_{12}$	5.0	5	443.5	_	_	_	_
VI-1	$Pb_{0.01}Ce_{0.03}Gd_{2.96}Al_{3.13}Ga_{1.87}O_{12}$	50.7	45	443.5	-	_	_	-
VI-2	$Pb_{0.01}Ce_{0.03}Gd_{2.96}Al_{3.12}Ga_{1.88}O_{12}$	73.0	28	443.3	1.7/11	11.2/47	39.1/42	~5700

Табл.2. Параметры роста эпитаксиальных пленок (Pb,Gd)<sub>3</sub>(Al,Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се и их катодолюминесценции.

области до 360 нм с заметным уменьшением интенсивности полосы поглощения уровня 5d<sub>2</sub> наблюдается и в спектрах поглощения пленок IV-2 и VI-2, представленных на рис.1, $\partial$ . Увеличение поглощения в этой области с ростом концентрации легирующих двухвалентных ионов наблюдалось в различных матрицах, например в монокристаллах Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>: Се (1 ат. %) при легировании Mg [16], в оптической керамике Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се при легировании Mg [17] и в поликристаллических порошках Lu<sub>0.8</sub>Sc<sub>0.2</sub>BO<sub>3</sub>: Се (1 ат. %) при легировании Ca, Mg, Sr [18]. Это явление можно объяснить возникновением Ce<sup>4+</sup>-центров и связанным с этим электронным переходом с переносом заряда от уровней O<sup>2–</sup>, расположенных у потолка валентной зоны, на уровни основного состояния Ce<sup>4+</sup> [17].

Спектры фотолюминесценции и возбуждения фотолюминесценции для выращенных пленок представлены на рис.2. При возбуждении на  $\lambda = 165$  нм (7.5 эВ) наблюдалась широкая полоса фотолюминесценции с максимумом вблизи 532 нм (2.33 эВ), которая соответствует излучательному 5d<sup>1</sup>  $\rightarrow$  4f<sup>1</sup>-переходу внутри ионов Ce<sup>3+</sup>.



Рис.2. Спектры фотолюминесценции пленок IV-1 (1) и IV-2 (2) при возбуждении на  $\lambda = 165$  нм (7.5 эВ) и T = 300 К, а также спектр возбуждения фотолюминесценции на  $\lambda = 540$  нм (2.29 эВ) эпитаксиальной пленки IV-2 (3) при T = 300 К. На вставке – диаграмма сравнения максимальной интенсивности фотолюминесценции пленок (Pb, Gd)<sub>3</sub>(Al, Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се, выращенных из растворов-расплавов I, III, IV, V, VI при возбуждении на  $\lambda = 344$  нм (3.6 эВ) и T = 300 К.

Оказалось, что интенсивность этой полосы фотолюминесценции сильно зависит от состава раствора-расплава и ростовых параметров. Наиболее интенсивной она была в пленках, выращенных из раствора-расплава IV (см. вставку на рис.2, и табл.1 и 2). Пленки, выращенные из растворов-расплавов V и VI, показали меньшую интенсивность фотолюминесценции. В спектре возбуждения фотолюминесценции пленки IV-2 в области длин волн 260-500 нм наблюдались две полосы с максимумами на 448 нм (2.77 эВ) и 343 нм (3.61 эВ), которые соответствуют полосам поглощения ионов Ce<sup>3+</sup>, и широкая полоса при 278 нм (4.46 эВ), соответствующая полосам поглощения ионов Pb<sup>2+</sup> и Gd<sup>3+</sup> (электронные переходы  ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{1}$  в ионах Pb<sup>2+</sup> и  ${}^{8}S_{7/2} \rightarrow {}^{6}I_{15/2-7/2}$ -переходы в ионах Gd<sup>3+</sup> [19]) (рис.2, кривая 3). Наличие последней полосы на  $\lambda$  = 278 нм показывает передачу энергии от ионов Gd<sup>3+</sup> и/или Pb<sup>2+</sup> к иону Ce<sup>3+</sup>.

Из положения максимумов полосы поглощения уровня  $5d_1$  и фотолюминесценции для пленки IV-2 был рассчитан стоксов сдвиг при 300 К. Для этой пленки он составил 0.46 эВ, что значительно меньше, чем у монокристалла  $Gd_3Ga_2Al_3O_{12}$ : Се (1 ат. %), для которого он равен 0.61 эВ [20].

В табл.2 приведены времена затухания катодолюминесценции с долями выхода излучения каждой компоненты. Для эпитаксиальной пленки IV-2 с максимальной интенсивностью люминесценции, времена затухания таковы:  $\tau_3 \sim 61$  нс,  $\tau_2 \sim 24.9$  нс и  $\tau_1 \sim 2.1$  нс, причем максимальная доля выхода излучения, 68%, приходится на медленную компоненту  $\tau_3$ . Эпитаксиальные пленки V-1 и VI-2 имеют наименьшие времена затухани:  $\tau_3 \sim 39$  нс,  $\tau_2 \sim 11.1$  нс и  $\tau_1 \sim 1.7$  нс. При этом доля выхода излучения перераспределяется: в пленках V-1 и VI-2 максимальная доля выхода излучения приходится на среднюю компоненту  $\tau_2$  и составляет 47%, а в пленках III-1, IV-2 и IV-3 – на  $\tau_3$  и составляет 60%-70%. На рис.3 приведена кинетика затухания катодолюминесценции пленок IV-2 и VI-2, показывающая уменьшение времен затухания. Значения световыхода катодолюминесценции пленок, определенные относительно монокристалла LYSO: Се, приведены в табл.2. Видно, что максимальный световыход ~51500 фотон./МэВ имеет пленка Pb<sub>0.01</sub>Ce<sub>0.03</sub>Gd<sub>2.96</sub>Al<sub>3.14</sub>Ga<sub>1.86</sub>O<sub>12</sub> (IV-2). При сравнении световыхода той же пленки со световыходом монокристаллом CeF<sub>3</sub> было получено несколько меньшее значение - 46000 фотон./МэВ, что позволяет оценить по-



Рис.3. Кинетика затухания катодолюминесценции пленок IV-2 (1) и VI-2 (2) при импульсном возбуждении электронной пушкой с длительностью одиночного импульса 300 пс. Точки – эксперимент, сплошная линия – аппроксимация кривой, представляющей собой сумму трех экспонент с временами затухания  $\tau_1$ ,  $\tau_2$ ,  $\tau_3$ . Время затухания медленной компоненты  $\tau_3$  для пленки IV-2 составляет 61 нс, для пленки VI-2 – 39 нс.

грешность методики. Значения световыхода для пленок, выращенных из раст-воров-расплавов V и VI, уменьшаются почти в два раза. Кроме того, для пленки IV-2 наблюдается снижается уровень фона, соответствующий, вероятно, более медленным компонентам затухания (рис.3). Это свидетельствует о том, что наличие в кристалле центров Ce<sup>4+</sup> также уменьшает вклад этих медленных компонент затухания ( $\tau > 200$  нс).

Из проведенных измерений следует, что в пленках, выращенных из высокотемпературных растворов-расплавов V и VI, по сравнению с пленками, выращенными из раствора-расплава IV, образуются центры Ce<sup>4+</sup>, которые приводят к уменьшению интенсивности фотолюминесценции, относительного световыхода и времен затухания, а также к росту поглощения в области до 360 нм при уменьшении интенсивности полосы поглощения уровня 5d<sub>2</sub>.

#### 4. Заключение

Таким образом, исследование оптического поглощения и фотолюминесценции в эпитаксиальных пленках (Pb, Gd)<sub>3</sub>(Al, Ga)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Се, выращенных из содержащих Pb растворов-расплавов при концентрациях  $C(Gd_2O_3) = 0.2$ , 0.3, 0.4 и 0.5 мол. %,  $C(CeO_2) = 0.2 \text{ и} 0.3 \text{ мол. }\%$  и  $C(Al_2O_3) = 2.1$ , 4.0 и 4.5 мол. % в шихте, позволило определить состав раствора-расплава, при выращивании из которого пленки имеют максимальную интенсивность полосы фотолюминесценции ионов Ce<sup>3+</sup> и максимальный световыход катодолюминесценции, достигающий 51500 фотон./МэВ. Такие эпитаксиальные пленки перспективно использовать для получения микроизображений с помощью жестких рентгеновских лучей.

Работа поддержана European Social Fund's Doctoral Studies and Internationalisation Programme DoRa и Estonian Research Council (PUT1081) и выполнена с использованием оборудования, приобретенного за счет средств Программы развития Московского университета.

- Douissard P.-A., Cecilia A., Martin Th. Chevalier V., Couchaud M., Baumbach T., Dupre K., Kuehbacher M., Rack A. J. Synchrotron Rad., 17, 571 (2010).
- Alekhin M.S., Patton G., Dujardin C., Douissard P.-A., Lebugle M., Novotny L., Stampanoni M. J. *Opt. Express*, 25, 654 (2017).
- Kamada K., Kurosawa Sh., Prusa P., Nikl M., Kochurikhin V.V., Endo T., Tsutumi K., Sato H., Yokota Yu., Sugiyama K., Yoshikawa A. J. Opt. Mater., 36, 1942 (2014).
- Kamada K., Nikl M., Kurosawa Sh. Beitlerova A., Nagura Ay., Shoji Ya., Pejchal Ja., Ohashi Yu, Yokota Yu., Yoshikawa A. J. Opt. Mater., 41, 63 (2015).
- 5. Nikl M., Yoshikawa A. Adv. Opt. Mater., 3, 463 (2015).
- Karner T., Laguta V.V., Nikl M., Shalapska T., Zazubovich S. J. Phys. D: Appl. Phys., 47, 065303 (2014).
- Vasil'eva N.V., Spassky D.A., Randoshkin I.V. Aleksanyan E.M., Vielhauer S., Sokolov V.O., Plotnichenko V.G., Kolobanov V.N., Khakhalin A.V. *Mater. Res. Bull.*, 48, 4687 (2013).
- Васильев Д.А., Верещагин К.А., Верещагин А.К., Спасский Д.А., Соколов В.О., Хахалин А.В., Васильева Н.В., Галстян А.М., Плотниченко В.Г. Прикладная физика, 4, 5 (2015).
- Zorenko Yu., Voloshinovskii A., Savchyn V., Voznyak T., Nikl M., Nejezchleb K., Mikhailin V., Kolobanov V., Spassky D. J. Phys. Stat. Sol. (b), 244, 2180 (2007).
- Васильев Д.А., Спасский Д.А., Воронов В.В., Соколов В.О., Хахалин А.В., Васильева Н.В., Плотниченко В.Г. *Неорганические материалы*, **51** (10), 1090 (2015).
- Omelkov S. I., Nagirnyi V., Vasil'ev A.N., Kirm M. J. Luminesc., 176, 309 (2016).
- Moszynski M., Kapusta M., Mayhugh M., Wolski D., Flyckt S.O. IEEE Transact. Nucl. Sci., 44, 1052 (1997).
- Auffray E., Baccaro S., Beckers T., Benhammou Y., Belsky A.N., Borgia B., Boutet D., Chipaux R., Dafinei I., de Notaristefani F., Depasse P., Dujardin C., Mamouni H. El, Faure J.L., Fay J., Goyot M., Gupta S.K., Gurtu A., Hillemanns H., Ille B., Kirn T., Lebeau M., Lebrun P., Lecoq P., Mares J.A., Martin J.P., Mikhailin V.V., Moine B., Nelissen J., Nikl M., Pedrini C., Raghavan R. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, 383, 367 (1996).
- Khodyuk I.V., Dorenbos P. *IEEE Transact. Nucl. Sci.*, **59**, 3320 (2012).
- 15. Scott G.B., Page J.L. J. Appl. Phys., 48, 1342 (1977).
- Kamada K., Shoji Y., Kochurikhin V.V., Nagura A., Okumura S., Yamamoto S., Yeom J.Y., Kurosawa S., Pejchal J., Yokota Y., Ohashi Y., Nikl M., Yoshino M., Yoshikawa A. *IEEE Transact. Nucl. Sci.*, 63 (2), 443 (2016).
- Liu Sh., Feng X., Zhou Zh., Nikl M., Shi Yu., Pan Yu. J. Phys. Stat. Sol. RRL, 8 (1), 105 (2014).
- Wu Yu., Ren G., Ding D., Zhang G., Shang Sh., Sun D., Pan Sh. J. Opt. Mater., 35, 520 (2013).
- Рандошкин В.В., Васильева Н.В., Плотниченко В.Г., Пырков Ю.Н., Лаврищев С.В., Иванов М.А., Кирюхин А.А., Салецкий А.М., Сысоев Н.Н. ФТТ, 46, 1001 (2004).
- Ogiegło J. M., Katelnikovas A., Zych A., Justel Th., Meijerink A., Ronda C.R. J. Phys. Chem. A, 117, 2479 (2013).