

ВЛИЯНИЕ ФЛЮЕНСА УСКОРЕННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ НА ПАРАМАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА НРНТ АЛМАЗОВ

И.И. Азарко¹⁾, И.А. Карпович¹⁾, О.В. Игнатенко²⁾, А.В. Коновалова²⁾, С.Б. Ластовский²⁾, В.А. Комар²⁾

¹⁾Белорусский государственный университет,

пр. Независимости 4, 220030 Минск, Беларусь, azarko@bsu.by

²⁾НПЦ НАН Беларуси по материаловедению, ул. П. Бровки 19, 220072 Минск, Беларусь, ignatenko@physics.by, konovalovaalex@gmail.com

Изучено влияние величины флюенса ускоренных электронов с энергией 6 МэВ на парамагнитные свойства кристаллов алмаза, синтезированных методом НРНТ в системах Fe-Ni-C и Fe-Al-C при температуре 1600 °С и давлении 5 ГПа в течение 85 часов. Установлено, что для алмазов типа Ib характерно резкое увеличение интенсивности сигнала С-дефекта при флюенсе $3 \cdot 10^{18}$ эл/см², а также изменение мощности насыщения для центральной компоненты сигнала. Для облученных образцов типа Ia регистрировалась лишь центральная компонента сигнала ЭПР с $g=2.0024$, интенсивность которой увеличивается с ростом флюенса ускоренных электронов, что может быть связано с генерацией радиационных дефектов.

Ключевые слова: синтетические алмазы; парамагнитные дефекты; облучение ускоренными электронами.

EFFECT OF FLUENCE OF ACCELERATED ELECTRONS ON PARAMAGNETIC PROPERTIES OF NRNT DIAMONDS

Igor Azarko¹⁾, Igor Karpovich¹⁾, Oleg Ignatenko²⁾, Alexandra Konovalova²⁾,
Stanislav Lastovsky²⁾, Valery Komar²⁾

¹⁾Belarusian State University, 4 Nezavisimosti Ave., 220030 Minsk, Belarus, azarko@bsu.by

²⁾SSPA «Scientific and Practical Material Research Center»,

19 P. Brovka Str., 220072 Minsk, Belarus, ignatenko@physics.by, konovalovaalex@gmail.com

The diamond single crystals (10 samples) synthesized by the method of high pressures and high temperatures in the region of the thermodynamic stability of diamond (temperature 1600 °C and pressure 5 GPa) by gradual recrystallization of carbon dissolved in the molten metal were investigated. Diamonds were synthesized for 85 hours in two growth systems: Fe – Ni – C and Fe – Al – C. As a result, yellow (type Ib) and colorless (type Ia) crystals were obtained. The samples were investigated by the method of electron paramagnetic resonance. The concentration of paramagnetic centers was determined from the EPR spectra. Registration was carried out in phase with modulation of the magnetic field at room temperature and microwave power values of 0.01, 0.2, 1, 5, and 15 mW, orientation of the external magnetic field $H_0 \parallel \langle 100 \rangle$. For all crystals type Ib, paramagnetic signals from C defect and exchange-coupled nitrogen atoms were recorded, which indicates a high concentration of nitrogen atoms in the samples ($5 \cdot 10^{17}$ - $5 \cdot 10^{19}$ cm⁻³). For diamonds of type Ia, the EPR signal was not recorded. Then, the samples were irradiated with accelerated electrons with an energy of 6 MeV in three stages: with a fluence of $3 \cdot 10^{17}$ el/cm², $9 \cdot 10^{17}$ el/cm² and $3 \cdot 10^{18}$ el/cm². As a result, the yellow diamonds changed color to green, and colorless diamonds turned greenish blue. It was found that for diamonds from type Ib, a sharp increase in the intensity of the signal from the C-defect was observed at a fluence of $3 \cdot 10^{18}$ el/cm², as well as a change in the saturation power for the central signal component. For irradiated samples of type Ia, only the central component of the EPR signal with $g = 2.0024$ was recorded, the intensity of which increases with increasing fluence of accelerated electrons, which may be due to the generation of radiation defects.

Keywords: synthetic diamonds; paramagnetic defects; irradiation with accelerated electrons.

Введение

Алмаз занимает исключительное положение в цивилизации на протяжении многих веков, являясь прекраснейшим драгоценным камнем и одновременно самым твердым абразивным и режущим материалом. Концентрация уникальных свойств в алмазе во многом связана с его кристаллической структурой и присутствием в ней большого количества различных примесных, преимущественно азотных, и собственных дефектов. Исследование дефектной системы в сверхтвердых матрицах и связанных с ними физических свойств позволит расширить сферу практического использования алмаза как широкозонного полупроводникового материала для изготовления электронных устройств с экстремальными параметрами, а также способствует развитию имеющихся и созданию новых методов производства синтетических аналогов с заданными свойствами и облагораживания бриллиантов.

Одним из точечных дефектов в алмазе являются NV-центры, которые представляют собой вакансию, захваченную одиночным атомом азота в узле решетки алмаза. NV-центры образуются при облучении алмазов типа Ib и Ia+Ib с последующим отжигом [1].

Генерация и исследование NV-центров в структуре НРНТ алмазов и связанных с ними свойств имеют фундаментальное и практическое значение для дальнейшего расширения области применения алмазов.

В настоящее время NV-центры рассматриваются как базовый логический элемент будущего квантового процессора, необходимого для создания новых компьютеров, линий связи с квантовым протоколом безопасности и других применений в спинтронике.

Также следует отметить, что алмазы с дефектами NV имеют фантазийную красную окраску различной интенсивности и оттенков (от светло-

розового до темно-пурпурного цвета), которая является наиболее ценной в ювелирной промышленности.

Методика эксперимента

В ходе эксперимента было исследовано 10 монокристаллов алмаза, синтезированных методом высоких давлений и высоких температур (НРПТ-метод) в области термодинамической стабильности алмаза (температуре 1600 °С и давлении 5 ГПа) путем постепенной перекристаллизации углерода, растворенного в расплавленном металле. Синтез алмазов осуществлялся в течение 85 часов в двух системах роста: Fe-Ni-C и Fe-Al-C. В результате были получены желтые (тип Ib) и бесцветные (тип Ia) кристаллы алмаза, фотографии которых представлены на рисунках 1 и 2 соответственно. Синтезированные алмазы (10 кристаллов) исследовались методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР-спектроскопия). Концентрация парамагнитных центров определялась по спектрам ЭПР, регистрируемых на спектрометре «VarianE-112». Регистрация проводилась в фазе с модуляцией магнитного поля при комнатной температуре и значениях СВЧ-мощности 0.01, 0.2, 1, 5 и 15 мВт, ориентация внешнего магнитного поля $H_0 \parallel \langle 100 \rangle$.

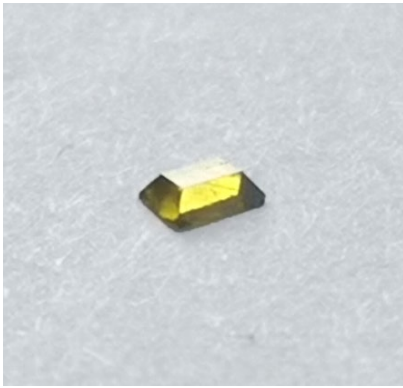


Рис. 1. Монокристаллы алмаза, синтезированные методом НРПТ в системе роста Fe-Ni-C

Fig. 1. Diamond single crystals, which were synthesized by the HPHT method in the growth system Fe-Ni-C



Рис. 2. Монокристаллы алмаза, синтезированные методом НРПТ в системе роста Fe-Al-C

Fig. 1. Diamond single crystals, which were synthesized by the HPHT method in the growth system Fe-Al-C

Результаты и их обсуждение

Типичный спектр ЭПР, зарегистрированный для исходного желтого алмаза, представлен на рисунке 3. Для бесцветных кристаллов сигнал ЭПР не зарегистрирован.

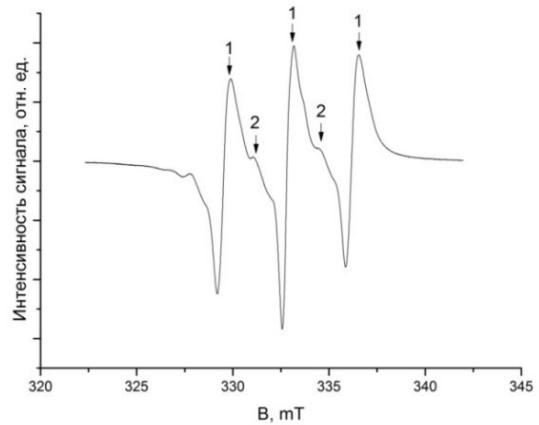


Рис. 3. Типичный спектр ЭПР исходного желтого алмаза: 1 – азот в С-форме (P1-центр), 2 – обменно-связанные атомы азота

Fig. 3. Typical EPR spectrum of the original yellow diamond: 1 - C-shaped nitrogen (P1-center), 2 - exchange-linked nitrogen atoms.

Во всех кристаллах желтого алмаза, синтезированных в системе Fe-Ni-C, регистрировались парамагнитные сигналы от одиночных изолированных атомов азота в положении замещения (С-дефект) и от обменно-связанных атомов азота [2]. Наличие сигнала от обменно-связанных атомов азота свидетельствует о высокой концентрации атомов азота в образцах ($5 \cdot 10^{17}$ - $5 \cdot 10^{19}$ см⁻³), когда проявляются их обменные взаимодействия [3].

Далее образцы подвергались облучению ускоренными электронами с энергией 6 МэВ. Желтые и бесцветные кристаллы алмаза располагались перпендикулярно пучку электронов, облучение проводилось в три этапа: набранная доза составляла $3 \cdot 10^{17}$ эл/см², $9 \cdot 10^{17}$ эл/см² и $3 \cdot 10^{18}$ эл/см². В результате желтые алмазы изменили цвет на зеленый (рис. 4, а), а бесцветные – приобрели зеленовато-синий цвет (рис. 4, б).

По данным спектров ЭПР были построены зависимости интенсивности сигналов от мощности СВЧ для разного флюенса ускоренных электронов.

Зависимость интенсивности сигнала центральной и боковой компонент С-дефекта от мощности СВЧ для исходных алмазов, синтезированных в системе Fe-Ni-C, а также с набранной дозой $3 \cdot 10^{17}$ эл/см², $9 \cdot 10^{17}$ эл/см² и $3 \cdot 10^{18}$ эл/см² представлена на рис. 5. При облучении образцов с флюенсом до $9 \cdot 10^{17}$ эл/см² для центральной и боковой компонент наблюдалось небольшое (до 20 %) снижение интенсивности сигналов. Мощность насыщения сигналов как для исходных, так и для облученных образцов, составляла 1 мВт. При увеличении флюенса до $3 \cdot 10^{18}$ эл/см² произошло резкое увеличение интенсивности сигналов (примерно в 2 раза), а мощность насыщения для центральной компоненты составила 5 мВт.

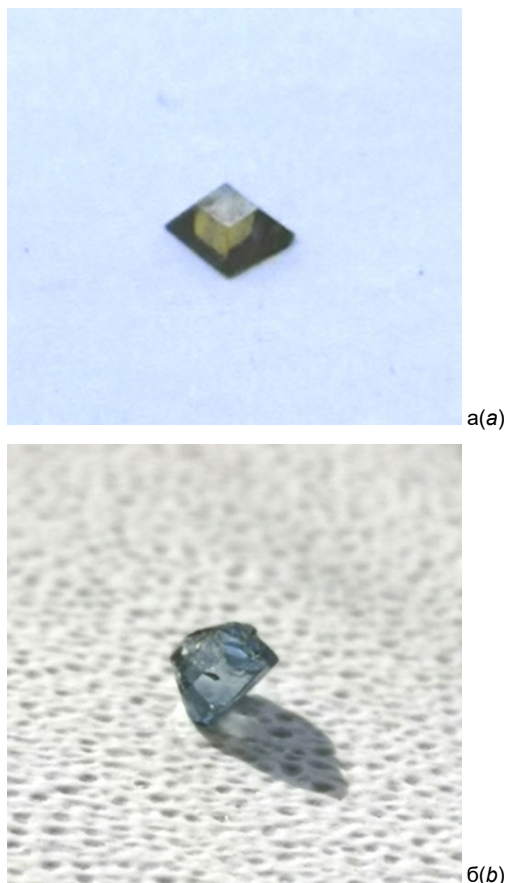


Рис. 4. Монокристаллы алмаза, синтезированные в системах роста Fe-Ni-C (а) и Fe-Al-C (б), после облучения ускоренными электронами (флюенс $3 \cdot 10^{18}$ эл/см²)

Fig. 4. Diamond single crystals synthesized in Fe-Ni-C (a) and Fe-Al-C (b) growth systems after irradiation by accelerated electrons (fluence $3 \cdot 10^{18}$ el/cm²)

Для облученных алмазов, синтезированных в системе Fe-Al-C, регистрировалась лишь центральная не насыщающаяся компонента сигнала с $g=2.0024$ (соответствует сигналу от С-дефекта). Зависимость интенсивности сигнала от мощности СВЧ для исходных алмазов, а также с набранной дозой $3 \cdot 10^{17}$ эл/см², $9 \cdot 10^{17}$ эл/см² и $3 \cdot 10^{18}$ эл/см² представлена на рисунке 5.

Закключение

Облучение ускоренными электронами синтетических алмазов, как с высокой концентрацией С-дефекта (тип Ib), так и с низкой (тип Ia), приводит к существенному изменению парамагнитных свойств. Для образцов типа Ib наблюдалось резкое увеличение интенсивности сигнала от С-дефекта при флюенсе $3 \cdot 10^{18}$ эл/см², а также изменение мощности насыщения для центральной компоненты сигнала. Для облученных образцов типа Ia регистрировалась лишь центральная компонента сигнала ЭПР с $g=2.0024$, интенсивность которой увеличивалась с ростом флюенса ускоренных электронов, что может быть связано с генерацией радиационных дефектов.

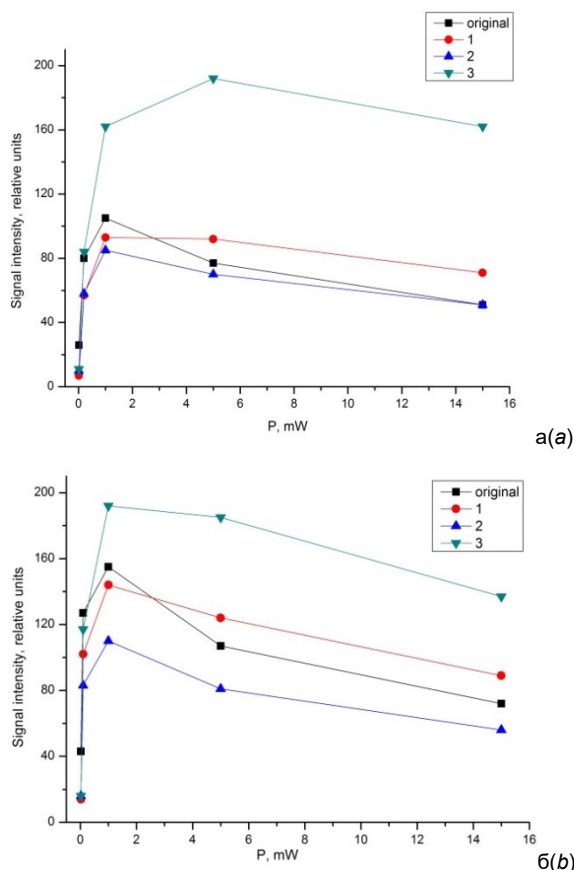


Рис. 5. Зависимость интенсивности сигнала центральной (а) и боковой (б) компонент С-дефекта от мощности СВЧ для исходных алмазов (original), синтезированных в системе Fe-Ni-C, а также с набранной дозой $3 \cdot 10^{17}$ эл/см² (1), $9 \cdot 10^{17}$ эл/см² (2) и $3 \cdot 10^{18}$ эл/см² (3)

Fig. 5. The dependence of the signal intensity of the central (a) and lateral (b) part of the C-defect from the microwave power for the original diamonds synthesized in the Fe-Ni-C system, as well as with a fluence of $3 \cdot 10^{17}$ el/cm² (1), $9 \cdot 10^{17}$ el/cm² (2) and $3 \cdot 10^{18}$ el/cm² (3)

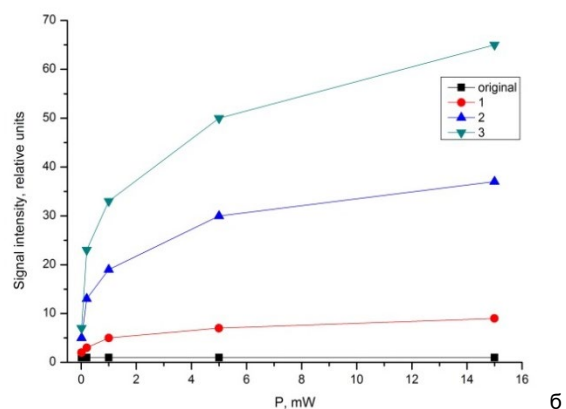


Рис. 6. Зависимость интенсивности сигнала ЭПР от мощности СВЧ для исходных алмазов (original), синтезированных в системе Fe-Al-C, а также с набранной дозой $3 \cdot 10^{17}$ эл/см² (1), $9 \cdot 10^{17}$ эл/см² (2) и $3 \cdot 10^{18}$ эл/см² (3)

Fig. 6. The dependence of the EPR signal intensity from the microwave power for the original diamonds synthesized in the Fe-Al-C system, as well as with a fluence of $3 \cdot 10^{17}$ el/cm² (1), $9 \cdot 10^{17}$ el/cm² (2) and $3 \cdot 10^{18}$ el/cm² (3)

Библиографические ссылки

1. Винс В.Г., Елисеев А.П., Сарин В.А. Физические основы современных методов облагораживания природных алмазов и бриллиантов. *Драгоценные металлы. Драгоценные камни* 2008; 180(12): 155.
2. Поклонский Н.А. Инвертирование при нормальных условиях сигнала электронного парамагнитного резонанса P1-центра в монокристалле синтетического алмаза. *Письма в журнал технической физики* 2006; 32(7): 61.
3. Field J.E. The properties of natural and synthetic diamonds. London: Academic Press, 1992. 710 p.

References

1. Vins. V.G., Eliseev A.P., Sarin V.A. Fizicheskie osnovy sovremennykh metodov oblagorazhivaniya prirodnykh

almazov i brilliantov [The physical basis of modern methods of elevation natural diamonds and brilliants] *Dragotsennye metally. Dragotsennye kamni*, 2008; 180(12): 155. (in Russian)

2. Poklonskiy N.A. Invertirovanie pri normal'nykh usloviyakh signala elektronnoy paramagnitnoy rezonansy P1-tsentra v monokristalle sinteticheskogo almaza [Inversion of the electron paramagnetic resonance signal of the P1 center under normal conditions in a single crystal of synthetic diamond]. *Pis'ma v zhurnal tekhnicheskoy fiziki*. 2006; 32(7): 61. (in Russian)
3. Field J.E. The properties of natural and synthetic diamonds. London: Academic Press, 1992. 710 p.