

Сцинтилляционные характеристики азот-вакансионных центров в алмазе

М. С. Русецкий, В. Н. Казючиц, Н. М. Казючиц*

Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030 Минск, Беларусь

* e-mail: kazuchits@bsu.by

Аннотация

Проведено сравнение сцинтилляционных свойств кристаллов алмаза, содержащих различные азот-вакансионные центры люминесценции: NV^0 , NV^- , $H3$, $N3$. Показано, что использование $H3$ -центров, является более предпочтительным для увеличения светового выхода сцинтиллятора. Длительность сцинтилляций в алмазах от α -частиц Pu^{239} не превышала 130 нс.

Ключевые слова: синтетический *HPHT* алмаз, сцинтиллятор, спектрометрия α -частиц.

Введение

Интерес к использованию алмаза в качестве сцинтилляционного материала обусловлен его высокой радиационной стойкостью, что связано с большой величиной пороговой энергии дефектообразования, составляющей около 50 эВ [1]. Кроме того, время затухания люминесценции большинства центров в алмазе находится в диапазоне от единиц до десятков наносекунд [2], что позволит получать короткие сцинтилляционные импульсы. Одним из главных требований к сцинтилляторам является “согласованность” их спектров люминесценции и поглощения. Для увеличения светового выхода сцинтиллятора спектральное положение максимумов люминесценции не должно совпадать с максимумами поглощения, то есть самопоглощение должно быть минимальным.

Цель работы – сравнение сцинтилляционных свойств монокристаллов синтетического HPHT алмаза, содержащих различные азот-вакансионные комплексы.

Методика проведения экспериментов

В экспериментах использовался слабоактивный источник α -частиц на основе Pu^{239} с энергией 5.2 МэВ и сопутствующим γ -излучением с энергией в диапазоне от 50 до 400 кэВ. Сцинтиллятор располагался в воздушной среде на диафрагме диаметром 3 мм на расстоянии 1 мм от источника. Рассеяние α -частиц в воздухе существенно ухудшало энергетическое разрешение этой системы. Однако образцы были неоднородными [3, 4] и не могли обеспечить хорошего энергетического разрешения. Поэтому дополнительное рассеяние α -частиц не являлось критически важным и позволяло упростить методику экспериментов.

Для регистрации амплитудного спектра α -частиц использовался ФЭУ 79 с предусилителем и промышленный 1024 канальный анализатор АТ1315. Форма импульса на выходе усилителя-формирователя регистрировалась цифровым осциллографом с шириной полосы 200 МГц.

В экспериментах использовали полированные пластины синтетического HPHT алмаза толщиной 350-500 мкм. Одна из пластин (образец номер 1) подвергалась быстрому термобарическому отжигу при температуре 2700 °С [5]. Вторая пластина (образец номер 2) подвергалась облучению электронами с энергией 1 МэВ и дозой $3 \cdot 10^{19}$ см⁻² с последующим термическим отжигом в вакууме при температуре 950 °С. Такие воздействия инициировали формирование дополнительных центров излучательной рекомбинации, образование которых

фиксировали методом катодолюминесценции (КЛ). Спектры КЛ регистрировали при комнатной температуре в спектральном диапазоне 360-900 нм. Энергия возбуждающих электронов составляла 10 кэВ.

Результаты и обсуждение

На рисунке 1а показаны спектры КЛ и пропускания для пластины алмаза номер 2 после облучения электронами и термического отжига. Как видно из рисунка, доминирующими чертами спектра являются линия 575 нм (NV^0 -центр) с набором фоновых повторений, широкая полоса вблизи 680 нм и слабая по интенсивности система линий 389 нм. Интересной особенностью спектра КЛ является проявление бесфононной линии 638 нм (NV^- -центр), но не в виде линии люминесценции, а в виде линии поглощения. На спектре пропускания этого образца доминирующим является поглощение NV -центром с широким фоновым крылом. Обращает на себя внимание, что максимум поглощения находится в окрестности 575 нм, что приводит к значительному ослаблению интенсивности сцинтилляционных импульсов (самопоглощение) от NV^0 -центра.

На рисунке 1б приведены спектры КЛ и пропускания для образца номер 1 после быстрого термобарического отжига. После отжига поверхность этого образца стала матовой. Дополнительные потери на рассеяние уменьшили коэффициент пропускания во всем спектральном диапазоне почти в четыре раза. В тоже время, из рисунка видно, что максимальное пропускание этого образца совпадает с положением максимума КЛ. Основной вклад в КЛ образца номер 1 дает центр 503 нм ($H3$ -центр) с широким фоновым крылом. Кроме того, в спектре присутствуют более слабые центры 575 нм и 415 нм ($N3$ -центр).

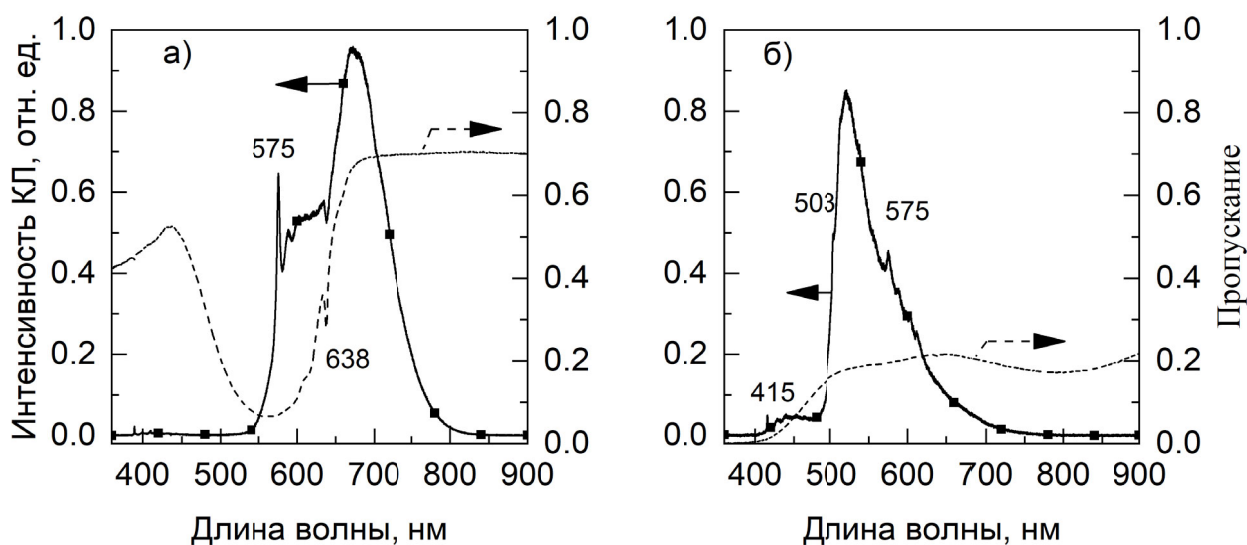


Рисунок 1. Спектры КЛ и пропускания образцов алмаза: (а) – после облучения электронами и отжига в вакууме, (б) – после быстрого термического отжига. Спектры измерены при комнатной температуре

Линия КЛ при 389 нм соответствует излучательному центру в алмазе, связанному с азотом в междоузельном положении. Линия 575 нм – NV^0 -центр соответствует комплексу азот-вакансия в нейтральном зарядовом состоянии. Комплексу азот-вакансия в отрицательном зарядовом состоянии соответствует линия 638 нм – NV^- -центр. Центры $H3$ и $N3$ содержат в своем составе два и три атома азота и углеродную вакансию, соответственно.

Для оценки сцинтилляционных свойств исследуемых пластин записывали с их помощью амплитудные спектры α -частиц, приведенные на рисунке 2. Интенсивные пики в каналах с номерами меньше 100 были сформированы шумами ФЭУ и регистрировались независимо от сцинтилляций. Длительность сцинтилляционных импульсов от обеих пластин составляла около 130 нс, что соответствовало быстродействию регистрирующей системы.

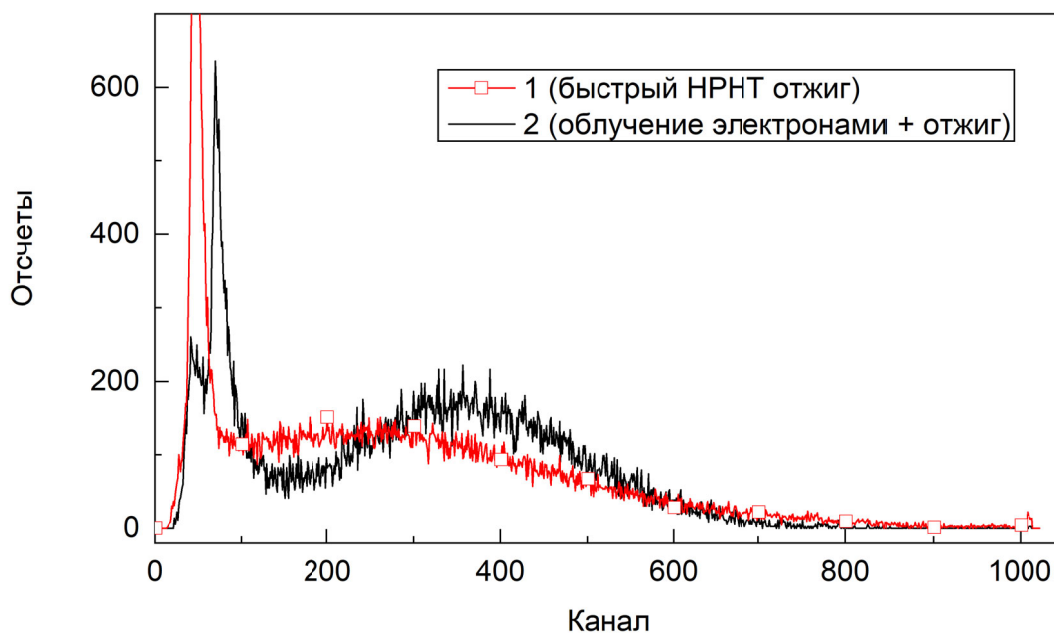


Рисунок 2. Энергетические распределения α -частиц, полученные с использованием алмазных сцинтилляторов: кривая (1) для образца 1 после быстрого термического отжига, кривая (2) для образца 2 после облучения электронами и отжига в вакууме

Энергетическое разрешение, как видно из рисунка 2, низкое для обоих образцов, что связано как с неоднородностью образцов, так и с разбросом энергии α -частиц. Не смотря на лучшее согласование спектров КЛ и поглощения для образца 1, регистрируемые сцинтилляции имели меньшую интенсивность, что связано с высоким рассеянием оптического сигнала матовой поверхностью.

Заключение

Выполненные исследования показали, что для использования кристаллов алмаза в качестве сцинтилляторов более предпочтительным является формирование в них $H3$ -центров люминесценции по сравнению с NV -центрами. Излучательные $H3$ -центры характеризуются меньшим самопоглощением. В то же время, формирование таких центров требует агрегирования примеси азота, для чего необходимы большие затраты, связанные с применением более высоких температур и длительностей отжига.

Список использованных источников:

- [1] D. Saada [et al.] International Journal of Modern Physics C 09 (1998) 61–69.
- [2] A.M. Zaitsev Optical properties of diamond: a data handbook. Springer, Berlin (2001) 486.
- [3] Н.М Казючиц [и др.] Неорганические материалы 50 (2014) 1449–1461.
- [4] E. Gaubas [et al.] DRM 47 (2014) 15–26.
- [5] V.N. Kazuchits [et al.] // Carbon 174 (2021) 180–189.