

07

## Тушение люминесценции N3 центра примесью азота в природном алмазе

© Е.А. Васильев, В.И. Иванов-Омский, Б.С. Помазанский,  
И.Н. Богуш

Якутское научно-исследовательское предприятие ЦНИГРИ  
акционерной компании „АЛРОСА“, Мирный  
E-mail: vasilyev@cnigri.alrosa-mir.ru  
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург

Поступило в Редакцию 22 марта 2004 г.

Проведено исследование тушения люминесценции центра N3 основными азотными дефектами A и B1 в природных алмазах с использованием в качестве меры интенсивности возбуждающего излучения для определения выхода люминесценции интенсивности комбинационного рассеяния. Показано, что выход люминесценции центра N3 уменьшается в 3000 раз при увеличении концентрации азота в форме A и B1 дефектов от 0.008 до 0.1 at.%.

Ранее было показано влияние примесного азота в форме A дефектов в алмазах на время затухания и полуширину бесфонных линий люминесценции N3 [1–3], N3 [4] и GR1 [5] центров, но количественные экспериментальные исследования тушения не проводились. В перечисленных работах предполагается, что тушение происходит вследствие диполь-квадрупольного взаимодействия, по этой модели выход люминесценции связан с концентрацией A дефектов экспоненциальной зависимостью [4]. В работе [6] сообщается о зависимости интенсивности люминесценции центра N3 не от концентрации, а от относительного содержания A, B1 и B2 дефектов.

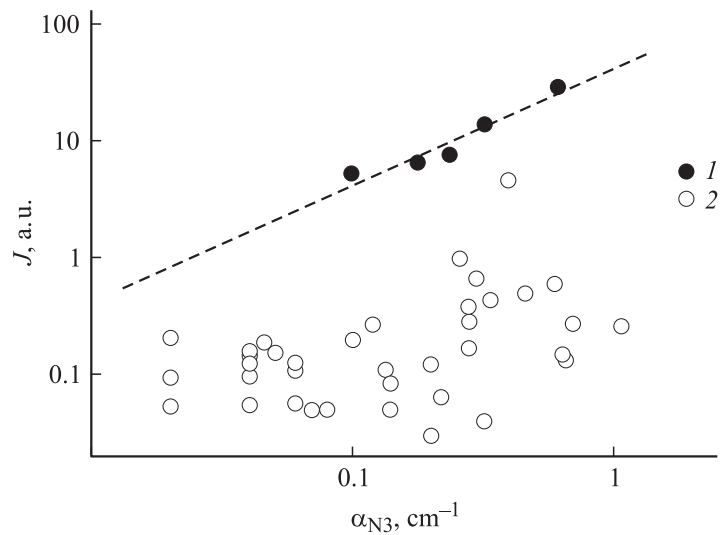
Проведено исследование тушения люминесценции центра N3 дефектами A и B1 в природных алмазах при комнатной температуре. В настоящее время установлены структурные модели A дефекта — два замещающих азотных атома и N3 центра — три замещающих азотных атома и вакансии [7]. Предполагаемая структурная модель дефекта B1 — четыре азотных атома и вакансии [7]. Структурная модель B2 дефектов, имеющих размер от нескольких нанометров до десятков микрон, до сих пор однозначно не установлена. Вероятно,

они представляют собой скопление межузельных атомов углерода в плоскостях  $\{100\}$  [7]. Методом спектроскопии характеристических потерь (EELS) установлено, что большинство центров В2 содержат также азот в количестве от 6 до 60% общего числа атомов [7]. В литературе отсутствуют данные о пространственной приуроченности центров N3 к В2, поэтому, а также вследствие большого размера В2 можно ожидать, что их взаимодействие с центрами N3 незначительно. Во всяком случае можно принять, что их вклад в это взаимодействие пропорционален общей концентрации азота в центрах А и В1. В качестве меры интенсивности возбуждающего излучения для определения выхода люминесценции использовали интенсивность линии комбинационного рассеяния (КР). КР алмаза первого порядка характеризуется частотным сдвигом в  $1332\text{ см}^{-1}$ , сечение  $\sigma = 6.5 \cdot 10^{-5}\text{ м}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  [8].

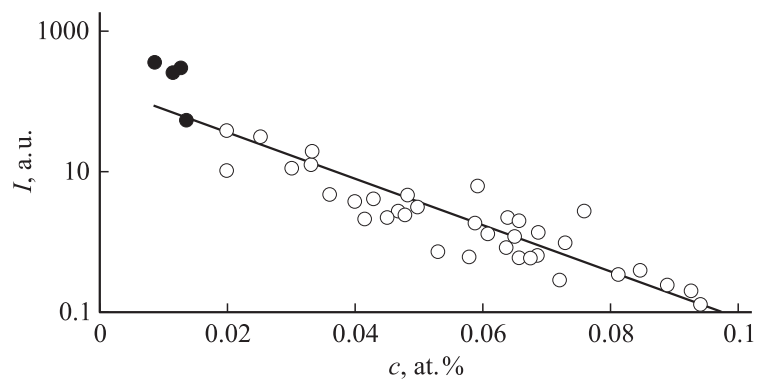
Для исследования были отобраны 42 природных алмаза типа Ia октаэдрической формы размером 2–6 мм, с однородным внутренним строением при наблюдении люминесценции под бинокляром. Концентрацию центров N3 определяли по коэффициенту поглощения бесфононной линии 415.2 нм спектрометром на базе монохроматора МДР-41. Спектры фотолюминесценции с линией КР регистрировали в диапазоне 345–600 нм при комнатной температуре на компьютеризированном двойном призмном монохроматоре ДМР-4. Источник возбуждения — азотный лазер ЛГИ-505, фотоприемник — ФЭУ-106. Коррекцию на неравномерность спектральной чувствительности фотоприемника и нелинейность дисперсии монохроматора не проводили. Линия КР характеризовалась только пиковой интенсивностью, эффект вынужденного КР не отмечен. Концентрацию азота в форме дефектов А и В1 определяли по спектрам поглощения в диапазоне  $400\text{--}4000\text{ см}^{-1}$ , зарегистрированным на ИК-Фурье-спектрометре ФСМ-1201 с использованием калибровочных значений из работ [9–11].

Интенсивность люминесценции в максимуме бесфононной линии N3 415.2 нм нормировали на интенсивность линии КР. Отношение нормированной интенсивности к коэффициенту поглощения считали пропорциональным выходу люминесценции центра N3. При изменении ориентации образца регистрируемый сигнал люминесценции изменялся в пределах порядка, с нормировкой на интенсивность линии КР изменения не превышали 10%. При переходе от образца к образцу разброс нормированных интенсивностей достигал трех порядков.

Зависимость нормированной интенсивности люминесценции от коэффициента поглощения центра N3 ( $\alpha_{N3}$ ) в логарифмических коор-



**Рис. 1.** Зависимость нормированной интенсивности люминесценции от коэффициента поглощения центра N3. 1 — точки первой группы, 2 — второй группы, пунктирная линия — линейная аппроксимация точек первой группы.



**Рис. 2.** Зависимость выхода люминесценции центра N3 от концентрации азота в форме дефектов A и B1. Обозначение точек соответствует рис. 1.

динах приведена на рис. 1, из которого видно, что кристаллы можно условно разделить на две группы. Для первой группы с ростом концентрации увеличивается интенсивность люминесценции. У второй группы люминесценция значительно ослаблена, а ее интенсивность слабо зависит от концентрации. На рис. 2 приведена зависимость выхода люминесценции от суммарной концентрации азота в форме дефектов  $A$  и  $B1$  в полулогарифмических координатах. Экспериментальные результаты, аппроксимируемые экспоненциальной зависимостью, подтверждают тушащее действие примесного азота [4] и позволяют определить тушение количественно. При построении индивидуальных зависимостей выхода люминесценции от концентраций азота в форме  $A$  и  $B1$  разброс точек увеличивается, отношение концентраций  $A$  к  $B1$  и  $A$  к  $B2$  (определяли по отношению коэффициентов поглощения) не влияет на выход люминесценции.

Таким образом, нормированная на интенсивность линии КР интенсивность бесфонной линии  $N3$  в фотолюминесценции, отнесенная к концентрации  $N3$  дефектов, может служить мерой совокупного тушения люминесценции в данном алмазе и позволяет снизить влияние геометрических факторов на результаты эксперимента. Тушение вызывается не только  $A$ , но и  $B1$  центрами, при увеличении суммарной концентрации азота в этих дефектах от 0.008 до 0.1 at.% выход люминесценции центра  $N3$  уменьшается в 3000 раз. По-видимому, полученные результаты справедливы в общем виде и для тушения люминесценции центров со сходными зависимостями нольфонных линий и кинетики затухания от концентрации азота  $N3$ ,  $N4$  [3], GR1 [5].

Возможности использования алмаза как активного элемента в лазерной технике далеко не полностью раскрыты даже применительно к центрам  $N3$  и  $N3$ . Сильнейшая дезактивация возбужденных состояний примесью азота уменьшает реальный коэффициент усиления на этих центрах и повышает порог генерации, что, по-видимому, имело место в работе [12]. Перспективным представляется достижение больших концентраций центров  $N3$  и  $N3$  в алмазе с низким содержанием азота.

## Список литературы

- [1] Бартошинский З.В., Бекеша С.Н., Васильев В.В. и др. // Минерал. журн. 1990. Т. 12. № 6. С. 85–87.
- [2] Соболев Е.В., Юрьева О.П. // Сверхтвердые материалы. 1990. № 2. С. 3–8.
- [3] Thomaz M.F., Davies G. // Proc. R. Soc. Lond. A. 1978. V. 362. P. 405–419.

- [4] *Crossfield M.D., Davies G., Collins A.T.* et al. // J. Phys. C. 1974. V. 7. P. 1909–1917.
- [5] *Davies G., Thomaz M.F., Nazare M.H.* et al. // J. Phys. C. 1987. V. 362. P. 405–419.
- [6] *Плотникова С.П.* // Алмаз в электронной технике. М.: Энергоатомиздат, 1990. С. 156–170.
- [7] *Goss J.P., Coomer B.J., Jones R.* et al. // Phys. Rev. B. 2003. V. 67. pp. art. no. 165208.
- [8] *Рассеяние света в твердых телах. В. 2 / Пер. с англ. под ред. М. Кардоны, Г. Гюнтеродта.* М.: Мир, 1984. 328 с. [Пер. с англ.: *Light Scattering in Solids II: Basic Concepts and Instrumentation / Eds. M. Cardona, G. Guntherodt.* Heidelberg.: Springer, 1982. 251 p.]
- [9] *Boyd S.R., Kiflawi I., Woods G.S.* // Phil. Mag. B. 1994. V. 69. P. 1149–1153.
- [10] *Boyd S.R., Kiflawi I., Woods G.S.* // Phil. Mag. B. 1995. V. 72. P. 351–361.
- [11] *Woods G.S.* // Proc. R. Soc. Lond. A. 1986. V. 407. P. 219–238.
- [12] *Мионов В.П.* Исследование возможностей создания новых оптических материалов на основе алмаза с GR1 и N3 центрами. Автореф. дис. канд. физ.-мат. наук. Иркутск, 1995.