

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ АЗОТНЫХ ДЕФЕКТОВ В СИНТЕТИЧЕСКИХ МОНОКРИСТАЛЛАХ АЛМАЗА, ПОЛУЧЕННЫХ ПРИ НЕИЗОТЕРМИЧЕСКИХ УСЛОВИЯХ РОСТА (ПО ДАННЫМ ИК-СПЕКТРОСКОПИИ)

Бабич Ю.В.¹, Фейгельсон Б.Н.²

¹Институт минералогии и петрографии СО РАН, Новосибирск, Babich@uiggm.nsc.ru;

²Geo Centers Inc., Naval Research Laboratory, Washington DC, USA

Разнообразие внутреннего строения природных алмазов и неоднородности их дефектно-примесного состава [1] однозначно свидетельствуют о вариации условий в процессе их формирования. В направлении исследований взаимосвязи особенностей реальной структуры алмаза с условиями роста, в данной работе проведено экспериментальное изучение закономерностей формирования азотных дефектов в синтетических монокристаллах алмаза, полученных при неизотермических условиях роста. Рост кристаллов проведен на аппарате высокого давления типа "разрезная сфера" методом температурного градиента в системе Fe-Ni-C при $P=6.0$ ГПа, $T=1370-1550^{\circ}\text{C}$. При этом эксперименты производили при режимах «ступенчатого» изменения температуры, включавших несколько низко- и высокотемпературных чередующихся изотермических стадий продолжительностью 6-22 часов с разницей в температуре до 110 градусов. Спектроскопическое исследование пластин, вырезанных из образцов по плоскости (-110), проводилось с использованием ИК-Фурье спектрометра Bruker Vertex-70 с микроскопом Nuregion 2000 (апертура 50 мкм). Спектры снимались поточечно по ряду сечений в октаэдрических секторах роста. Положение всех точек в кристалле пересчитывалось на вектор роста грани (111) [2]. Содержание азота в форме С-дефектов (одиночный замещающий углерод атом азота), N^+ дефектов (то же, но в зарядовом состоянии +1) и А-дефектов (замещающие углерод два атома азота в соседних позициях) определяли путем разложения ИК-спектра в однофононной области на соответствующие компоненты с расчетом концентраций на основе данных [3-5].

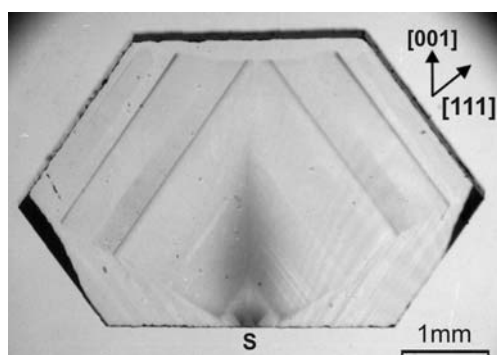


Рис.1. Пластина алмаза, вырезанная по направлению (-110), с видимой температурной зональностью роста. S – центр роста (положение затравки).

На рисунке 1 представлена пластина, изготовленная из одного из полученных и исследованных монокристаллов алмаза. Данные по распределению преобладающих С,

А дефектов и общего азота (определявшегося как сумма концентраций С, А и N+ дефектов) для наиболее развитых октаэдрических секторов роста данного образца представлены на рисунках 2 и 3, при этом температурный режим отражен схематично в виде пунктирной ломанной линии. Определено, что общее содержание азота в данном образце находится в пределах от 100 до 250 ppm, при этом, азот находится в виде С-дефектов (до 150 ppm), А-дефектов (до 245 ppm), и компонента N+ (до 25 ppm). Из основных особенностей распределения азотных дефектов можно отметить следующее:

- общее преобладание С-центров имеет место во внешних областях кристаллов, а А-дефектов - в околостраточной области;
- во внутренних областях кристалла степень агрегирования азота, выражающаяся в соотношении С и А дефектов, широко варьирует и достигает максимальных значений в областях динамического снижения Т, несколько обогащенных N+;
- общее содержание азота коррелирует с изменением температуры, повышаясь при ее снижении и наоборот.

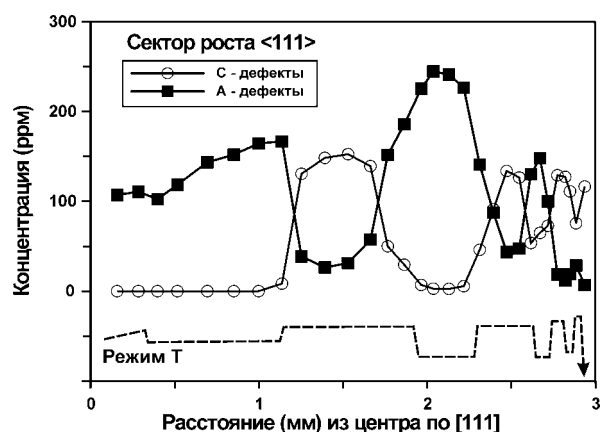


Рис.2. Распределение С и А-дефектов в секторе роста $\langle 111 \rangle$.

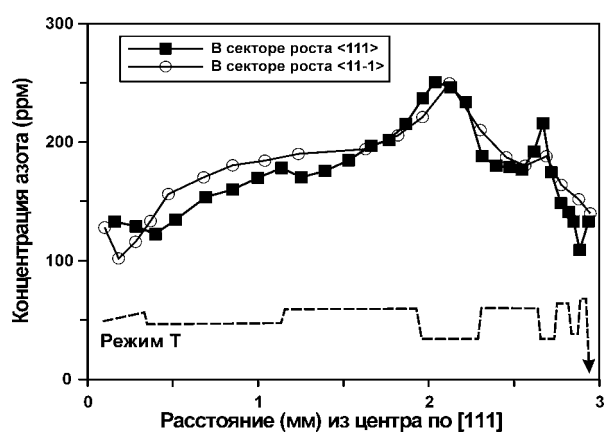


Рис.3. Распределение концентрации общего азота в октаэдрических секторах роста $\langle 111 \rangle$ и $\langle 11-1 \rangle$.

Отмеченные особенности распределения азотных дефектов согласуются с моделью захвата азота в дисперсном состоянии в виде С-центров и последующей термически активируемой диффузионной генерацией А-дефектов в процессе роста кристалла алмаза [6]. Обратная корреляция между температурой и интенсивностью вхождения азота в структуру алмаза [7] проиллюстрирована произведенными количественными оценками, которые показывают, что повышение температуры на 100°C приводит к снижению концентрации примесного азота в структуре алмаза на 50-60 ppm. Дополнительное влияние изменения температуры проявляется также в некотором возрастании концентрации азота в форме N+ при динамическом изменении температуры, что

соотносится с повышением концентрации А-дефектов. Это согласуется с данными [5] по прямой корреляции N⁺ и никеля, ускоряющего агрегирование, и подтверждает факт о более интенсивном вхождении никеля в структуру алмаза с повышением пересыщения [7-8].

В целом же представленные данные позволяют сделать общее заключение, что при постоянном составе системы температура (включая характер ее изменения) является основным фактором, влияющим на интенсивность вхождения и особенности трансформации примесного азота в структуре алмаза. Соответственно, применительно к изучению генезиса природных алмазов, полученные результаты позволяют предполагать весьма значимое влияние температуры на формирование их дефектно-примесного состава, характеризующегося, в частности, широким варьированием как форм, так и концентрации примеси азота.

Работа проведена при поддержке РФФИ (проект №04-05-64847).

1. Орлов Ю.Л. Минералогия алмаза // Москва. Наука. 1984. 264с.
2. Babich Y.V., Feigelson B.N., Fisher D. et al. The growth rate effect on the nitrogen aggregation in HTHP grown synthetic diamonds // *Diam. and Relat. Mater.* 2000. V.9. P.893-896.
3. Kiflawi I., Mayer A.E., Spear P.M. et al. Infrared absorption by the single nitrogen and A defect centers in diamond // *Philosophical Magazine B.* 1994. V.69. P.1141-1147.
4. Boyd S.R., Kiflawi I., Woods G.S. The relationship between infrared absorption and the A-defect concentration in diamond // *Philosophical Magazine B.* 1994. V.69. N.6. P.1149-1153.
5. Lawson S.C., Fisher D., Hunt D.C., Newton M.E. On the existence of positively charged single-substitutional nitrogen in diamond // *J.Phys.Condens.Matter.*1998.V.10. N.27. P.6171-6180.
6. Бабич Ю.В., Сурков Н.В. Моделирование распределения А-дефектов в кристаллах алмаза, полученных методом температурного градиента // *Неорганические материалы.* 2000. т.36. №6. С.710-714.
7. Kanda H., Lawson S.C. Growth temperature effects on impurities in HP/HT diamonds // *Industrial Diamond Review.* 1995. V.55. N.565. P.56-61.
8. Babich Y.V., Feigelson B.N., Yeliseyev A.P. Nitrogen aggregation and linear growth rate in HPHT synthetic diamonds // *Diam. and Relat. Mater.* 2004. V.13. P.1802-1806.