ISSN 1024-588X. Вісник Львівського ун-ту. Серія фізична. 2011. Випуск 46. С. 196–203
Visnyk of the Lviv University. Series Physics. 2011. Issue 46. P. 196–203

УДК 538.971
PACS 78.30.Hv

СПЕКТРИ ЛЮМІНЕСЦЕНЦІЇ КВАРЦУ ПІД ДІЄЮ ШВИДКИХ ЛЕГКИХ ІОНІВ

І. Ярова[1], В. Журенко[1], Н. Желтопятова[1], О. Калантар'ян[1], С. Кононенко[1], В. Муратов[1], В. Филиппенко[2]

[1] *Харківський національний університет ім. В. Н. Каразіна пр. Курчатова, 31, 61108 Харків, Україна*

[2] *Харківський національний аграрний університет ім. В. В. Докучаєва вул. Мазепи, 10, 62483 Харків, Україна*

Подано результати експериментального дослідження люмінесценції кварцу за умов опромінення пучком молекулярних іонів водню з енергією 420 кеВ. Спектри люмінесценції кварцу виміряно в діапазоні довжин хвиль від 400 до 700 нм для кутів спостереження від 0° до 60° за незмінного кута падіння 30°. Показано, що форма спектра змінюється зі підвищенням дози опромінення. Проведено математичну обробку експериментальних спектрів. Одержано залежність зміни форми спектра від поглинутої дози і визначено внески до люмінесцентного випромінювання від різних типів дефектів. Отримані дані дали змогу виявити деякі особливості динаміки утворення, модифікації та відпалу дефектів у кварці в процесі накопичення дози.

Ключові слова: іонолюмінесценція, кварц, спектр.

Кварцове скло широко використовується в сучасних приладах і установках як ізоляційний і оптичний матеріал. Наприклад, його використовують для виготовлення елементів в діагностичних каналах і каналах введення-виведення випромінювання різних установок. Фізичні, хімічні і механічні властивості цього матеріалу змінюються під дією потоків іонізуючих випромінювань. Причиною цього є процеси утворення, відпалу і модифікації різних типів дефектів та встановлення динамічної рівноваги між ними. Опромінення кварцу пучками швидких легких іонів супроводжується люмінесцентним випромінюванням в оптичному діапазоні довжин хвиль. Спектри люмінесценції вміщують у собі важливу інформацію про миттєвий стан твердого тіла, наявність в ньому дефектів різних типів. Отже, люмінесценція є унікальним каналом для моніторингу радіаційних процесів у твердому тілі.

© Ярова І., Журенко В., Желтопятова Н. та ін., 2011

У працях [1–3] було показано, що спектр іонолюмінесценції кварцу істотно змінюється після опромінення швидкими легкими іонами. Залишилося відкритим питання про вклад різних типів дефектів у формування люмінесцентних спектрів. У статті представлено кутові і спектральні характеристики люмінесценції кварцу, який опромінюється пучками швидких молекулярних іонів водню. Вперше проведена математична обробка експериментальних іонолюмінесцентних спектрів, що дало змогу виявити особливості дефектоутворення в кварці в процесі накопичення дози.

Експерименти з дослідження іонолюмінесценції проводилися на установці (рис. 1), яка була детально описана раніше [2]. Пучок молекулярних іонів водню H_2^+ з енергією 420 кеВ падав на кварцову мішень під кутом $\alpha = 30°$. Діаметр пучка після проходження крізь танталову діафрагму був 1,5 мм. Густина струму пучка змінювалась від 0,3 до 30 мА/см^2. Кут спостереження β люмінесцентного випромінювання зі зразка змінювався від $0°$ до $60°$ незалежно від кута падіння іонів на мішень завдяки використанню гнучкого світловоду. Для будь-якого кута спостереження люмінесцентне випромінювання реєструвалося зі всієї поверхні зразка, що опромінюється іонами. На виході світловода випромінювання збиралося кварцовим конденсором і потрапляло крізь кварцове вікно на вхідну щілину дифракційного монохроматора МДР-23. Виміри спектрів люмінесценції проводилися при кімнатній температурі в діапазоні довжин хвиль від 400 до 700 нм. Випромінювання приймалося фотоелектронним помножувачем ФЕП-100. Було проведено калібрування оптичного вимірювального каналу установки за допомогою спектрометричної лампи розжарювання СИ10-300У. Люмінесцентні спектри були скореговані за спектральною чутливістю вимірювального каналу і нормовані на струм пучка.

Досліджувались масивні зразки кварцу (квадратні пластини зі стороною 16 мм і товщиною 1 мм) з полірованими і хімічно очищеними поверхнями. Тиск залишкового газу в камері не перевищував 10^{-4} Па.

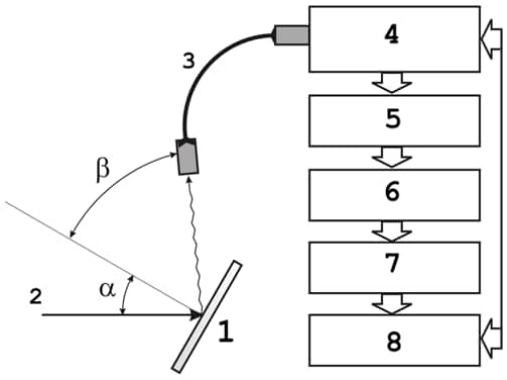

Рис. 1. Схема експерименту: 1 — мішень; 2 — пучок іонів; 3 — світловод; 4 — монохроматор; 5 — фотоелектронний помножувач; 6 — підсилювач; 7 — АЦП; 8 — комп'ютер

На рис. 2 представлено спектр іонолюмінесценції кварцу на початку опромінення для декількох значень кута спостереження. Максимальну інтенсивність спектрів люмінесценції простежують при куті спостереження $0\,^\circ$, а при збільшенні кута β вона монотонно зменшується. Типовий спектр складається з двох широких несиметричних смуг з максимумами близько 456 нм (синя або перша смуга) і 644–646 нм (червона або друга смуга). Наявність цих смуг в спектрах іонолюмінесценції кварцу пов'язують з двома різними типами власних дефектів кварцу. Короткохвильову смугу пов'язують з дефектами типу E′-центрів (атомом кремнію з тимчасово розірваним зв'язком за рахунок розпаду автолокалізованого екситона) [4, 5]. Цю смугу також пов'язують з іншими власними дефектами: нейтральною кисневою вакансією (киснева вакансія, що захопила два електрони) [6–8], трьохкоординованим атомом кремнію [4,5], або двохкоординованим кремнієм [9]. Довгохвильова смуга пов'язана з наявністю немісткового кисню (атом кисню з одним розірваним зв'язком) [4, 10].

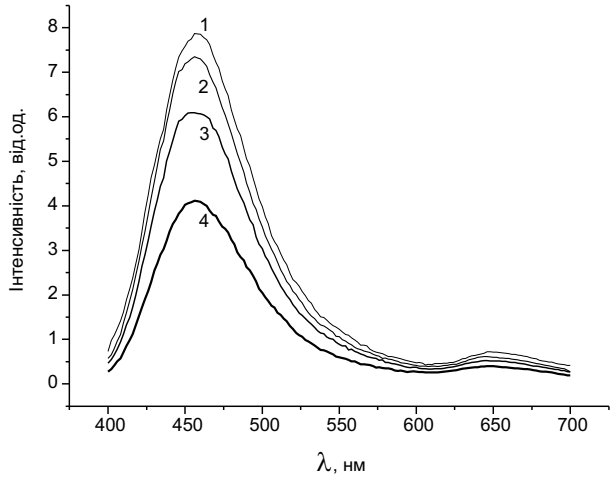

Рис. 2. Спектри іонолюмінесценції кварцу на початку опромінення для різних кутів спостереження β: 1 — $0\,^\circ$; 2 — $30\,^\circ$, 3 — $45\,^\circ$, 4 — $60\,^\circ$

Для того, щоб ефективно досліджувати зміну форми спектрів і мати можливість порівняння їх між собою, вони були нормовані на відповідне значення максимуму першої смуги (довжина хвилі 456 нм). Ця операція дозволяє порівнювати спектри, отримані за різних умов. В процесі набирання дози форма люмінесцентних спектрів змінювалася. Найбільші зміни були простежені в області довжин хвиль від 550 до 700 нм (рис. 3) Відносна інтенсивність люмінесценції в довгохвильовій частині блакитної смуги збільшувалася у всьому діапазоні досліджуваних доз, подібне спостерігали раніше у роботі [2]. В області максимуму червоної смуги була простежена немонотонна залежність зміни форми спектра від поглиненої дози. Схожа тенденція зберігалася і на інших кутах спостереження.

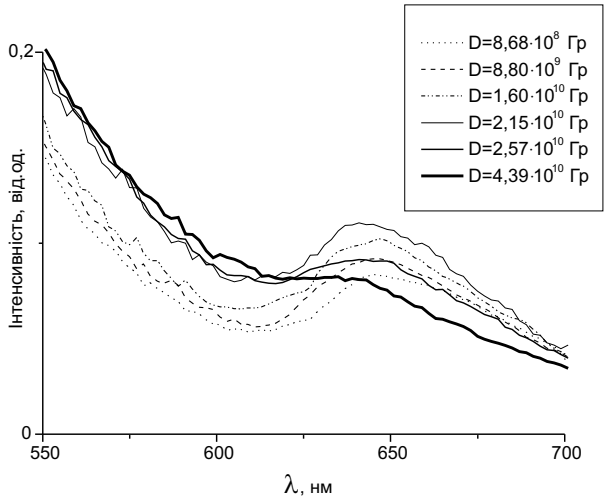

Рис. 3. Спектри іонолюмінесценції кварцу для різних доз ($\beta = 30\,^{\circ}$)

Як ми вже зазначали, наявність другої смуги з максимумом у червоній області довжин хвиль пов'язують з дефектами немісткового кисню. Також зазначимо, що зміна у формі спектра в цій області довжин хвиль зі зростанням дози може відбуватися і за рахунок впливу дефектів типу E′-центрів. З метою визначення вкладу від двох вищезгаданих типів дефектів у формування спектра люмінесценції в червоній області довжин хвиль була проведена процедура математичної обробки даних.

Аналіз сукупності експериментальних спектрів засвідчив, що в області довжин хвиль від 490 до 590 нм спектри з високою точністю апроксимуються функцією типу $f(\lambda) = \mathrm{e}^{a+b\lambda}$, де a і b — константи, λ — довжина хвилі. Як було визначено багатьма дослідниками [4–9], помітний внесок у люмінесцентне випромінювання в цій області довжин хвиль вносять лише дефекти типу E′-центрів. Тому можна передбачити, що спектральна смуга з максимумом близько 456 нм добре апроксимуватиметься вищезгаданою експоненціальною залежністю і для області довжин хвиль більше 590 нм. Це дасть змогу визначити вклад в сумарний люмінесцентний спектр від кожного типу дефектів окремо.

На рис. 4, *а* представлено апроксимовані спектри іонолюмінесценції E′-центрів в області довжин хвиль від 600 до 700 нм при різних поглинених дозах. В ході математичної обробки були виділені в явному вигляді спектри другої смуги в області довжин хвиль від 600 до 700 нм для тих самих значень поглиненої дози (див. рис. 4, *б*). В довгохвильовій частині першої смуги спостерігається монотонне зростання інтенсивності випромінювання зі зростанням поглиненої дози (див. рис. 4, *а*). На відміну від першої смуги зміна інтенсивності у другій смузі має більш складніший характер залежності від поглиненої дози (див. рис. 4, *б*). При дозах від $8,68 \cdot 10^8$ Гр до $1,60 \cdot 10^{10}$ Гр спостерігається зростання інтенсивності,

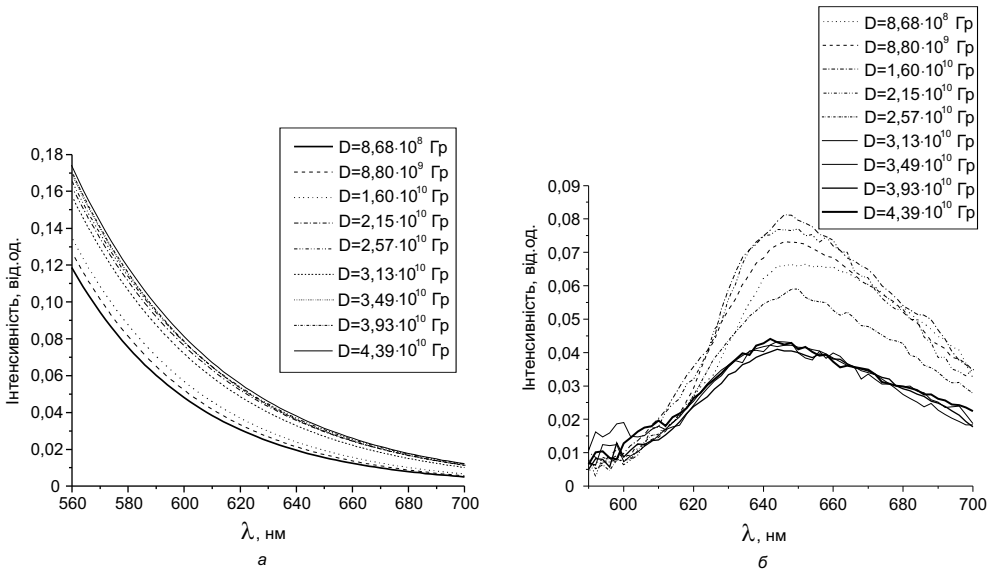

Рис. 4. Спектри іонолюмінесценції кварцу для різних доз ($\beta = 30\,^\circ$) після математичної обробки: *а* — довгохвильова область першої смуги; *б* — друга смуга

згодом, починаючи з дози $1,60 \cdot 10^{10}$ Гр — зменшення інтенсивності. Схожі зміни форм смуг в області довжин хвиль від 600 до 700 нм спостерігалися для всіх кутів β. Це може бути пов'язано з особливостями балансу утворення, відпалу і блокування дефектів. При відносно невеликих поглинених дозах в кварці превалює процес інтенсивного утворення дефектів типа немісткового кисню. Цим ефектом, швидше за все, обумовлено зростання інтенсивності люмінесцентного випромінювання в другій смузі. Відзначимо, що одночасно з дефектоутворенням відбувається процес накопичення водню, який може блокувати дефекти в кварцовому зразку, що зменшує інтенсивність люмінесценції. Автори роботи [11] зазначають, що характер розподілу водню в кварці залежить від величини накопиченої дози. У процесі опромінення може відбуватися помітне вирівнювання розподілу водню за рахунок процесу дифузії, що радіаційно стимулюється. У цьому випадку за рахунок блокування воднем дефектів типу немісткового кисню змінюється баланс дефектоутворення, а саме — блокування дефектів починає превалювати над процесом утворення нових власних дефектів зазначеного типу. У спектрі люмінесценції це проявляється в зменшенні інтенсивності другої смуги для доз більше $1,60 \cdot 10^{10}$ Гр.

Отже, ми встановили, що зі зростанням дози опромінення форма спектру змінюється. Найбільші зміни спостерігаються в області червоної смуги. Слід зазначити, що вклад у люмінесценцію в цій області довжин хвиль вносять дефекти обох типів: E′-центри і немістковий кисень. Для визначення впливу цих дефектів на формування люмінесцентного випромінювання була проведена математична

обробка експериментальних спектрів. Це дало змогу визначити вклад від кожної із смуг в червоної області спектра і виявити залежності зміни форми кожній із смуг від поглиненої дози. Показано, що зі зростанням поглиненої дози баланс утворення і блокування дефектів типу немісткового кисню змінюється. На початку опромінення відбувається накопичення дефектів, що спричинює зростання інтенсивності люмінесцентного випромінювання в області другої смуги. Ми вважаємо, що при дозах, більших ніж $1,60 \cdot 10^{10}$ Гр, починає превалювати процес блокування дефектів типу немісткового кисню воднем, що дифузно поширюється по зразку.

---

1. *Kalantaryan O. V.* Distance-monitoring of absorption dose on materials under ion irradiation / O. V. Kalantaryan, S. I. Kononenko, V. I. Muratov // J. Plasma Fusion Res. Ser. – 2000. - Vol. 3. – P. 274–276.
2. *Kononenko S. I.* Features of silica induced by molecular hydrogen ions / S. I. Kononenko, O. V. Kalantaryan, V. I. Muratov, et al. // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. – 2006. - Vol. 246. – P. 340–344.
3. *Калантарьян О. В.* Исследование оптического излучения кварца при бомбардировке легкими ионами / О. В. Калантарьян, С. И. Кононенко, Н. А. Манзюк et al. // Поверхность. Физика, химия, механика. – 1992. – Т. 5. – С. 45–49.
4. *Силинь А. Р.* Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и стеклообразном кварце SiO_2 / А. Р. Силинь, А. Н. Трухин. – Рига : Зинатне, 1985. - 244 с.
5. *Trukhin A. N.* Self-trapped exciton luminescence in — quartz / A. N. Trukhin // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. – 1994. – Vol. 91. – P. 334–337.
6. *Tanabe T.* Dynamic effects in energetic particle-induced luminescence of SiO2 / T. Tanabe, A. Omori, M. Fujiivara // J. of Nucl. Mat. – 1998. – Vol. 258–263. – P. 1914–1918.
7. *Pio F.* Intrinsic and impurity-related point defects in amorphous silica / F. Pio, M. Guzzi, G. Spinolo et al. // Phys. State Sol. (b). – 1990. – Vol. 159. – P. 577–588.
8. *Duraud J. P.* Radiation effects in SiO2 under electronic excitation / J. P.Duraud, F.Jollet, Y.Langevin et al. // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. – 1988. – Vol. 32. – P. 248–257.
9. *Skuja L. N.* A new intrinsic defect in SiO_2: twofold coordinated silicon / L. N. Skuja, A. N. Streletsky, A. B. Pakovich // Solid St. Com. – 1984. – Vol. 50, № 12. – P. 1069–1072.
10. *Skuja L. N.* A model of the non-bridging oxygen center in fused silica / L. N. Skuja, A. R. Silin // Phys. State Sol. (a). – 1982. – Vol. 70. – P. 43–49.

11. *Мокрушин А. Д.* Распределение имплантированного водорода в аморфной двуокиси кремния (α-SiO_2) / А. Д. Мокрушин, Ю. А. Агафонов, В. И. Зинченко и др. // Материалы XVI Международной конференции "Взаимодействие ионов с поверхностью (ВИП-2003)". – Том 2. – Звенигород, 2003.

SILICA LUMINESCENCE SPECTRA INDUCED BY FAST LIGHT IONS

I. Yarova[1], V. Zhurenko[1], N. Zheltopyatova[1], O. Kalantaryan[1], S. Kononenko[1], V. Muratov[1], V. Filipenko[2]

[1] *Kharkiv National University named by V.N. Karazin*
Kurchatov av., 31, 61108 Kharkiv, Ukraine

[2] *Kharkiv National Agricultural University named by V. V. Dokuchaev*
Mazepy str., 10, 62483 Kharkiv, Ukraine

We report the results of experimental studies for the luminescence in quartz induced by molecular hydrogen ions with the energy 420 keV. The luminescence spectra are measured in the wavelength range of 400–700 nm for the observation angles 0–60 ° and a constant incident angle (30°). It is shown that the shape of the spectra changes with raising irradiation dose. Mathematical processing of the experimental spectra is performed. A dependence of the spectral shape changes upon the absorbed dose is obtained and the contributions to luminescent emission arising from defects of different types are determined. The obtained data enable revealing some features of dynamics of defect creation, modification and annealing, which occur during dose accumulation in silica.

Key words: ionoluminescence, quartz, spectra.

СПЕКТРЫ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КВАРЦА ПРИ ОБЛУЧЕНИИ БЫСТРЫМИ ЛЕГКИМИ ИОНАМИ

И. Яровая[1], В. Журенко[1], Н. Желтопятова[1], О. Калантарьян[1], С. Кононенко[1], В. Муратов[1], В. Филиппенко[2]

[1] *Харьковский университет им. В. Н. Каразина пр. Курчатова, 31, 61108 Харьков, Украина*

[2] *Харьковский национальный аграрный университет им. В. В. Докучаева ул. Мазепы, 10, 62483 Харьков, Украина*

Представлены результаты экспериментального исследования люминесценции кварца при облучении пучком молекулярных ионов водорода с энергией 420 кэВ. Спектры люминесценции кварца измерены в диапазоне длин волн от 400 до 700 нм для углов наблюдения от 0 ° до 60 ° при неизменном угле падения 30 °. Показано, что форма спектра изменяется с повышением дозы облучения. Проведена математическая обработка экспериментальных спектров. Получена зависимость изменения формы спектра от поглощенной дозы и определены вклады в люминесцентное излучение от различных типов дефектов. Полученные данные позволили выявить некоторые особенности динамики образования, модификации и отжига дефектов в кварце в процессе накопления дозы.

Ключевые слова: ионолюминесценция, кварц, спектр.

Статтю отримано: 19.05.2010
Прийнято до друку: 14.07.2011