

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

И-485

P14-87-936

Р.А.Ильхамов¹, А.П.Кобзев, Г.М.Осетинский,
М.В.Пестрикова², В.Е.Тер-Нерсисянц²,
Д.М.Широков³, Ш.Х.Хушмуродов¹

ИССЛЕДОВАНИЕ
КОНЦЕНТРАЦИОННОГО ПРОФИЛЯ ВОДОРОДА
В ОПТИЧЕСКИХ СТЕКЛАХ

¹ Научно-исследовательский институт прикладной физики ТашГУ

² Государственный оптический институт им. С.И.Вавилова, Ленинград

³ МГУ им.М.В.Ломоносова

ВВЕДЕНИЕ

Задача определения концентрации водорода на поверхности и в объеме многокомпонентных оптических стекол является весьма актуальной в связи с большим влиянием содержания водорода на физико-химические свойства таких стекол. Для получения концентрационного профиля водорода в приповерхностных слоях ряда фосфатных и свинцовосиликатных стекол использовался метод детектирования протонов отдачи, выбиваемых из мишени ускоренными ионами ${}^4\text{He}$ с энергиями 2,2 и 2,4 МэВ. Метод позволяет оценивать интегральное содержание водорода в образцах на глубинах до ~ 1 мкм, получать глубинное распределение концентрации водорода (число атомов на см^3), а также исследовать содержание водорода в слое на поверхности образцов, обусловленном внешними загрязнениями.

В данной работе приведены типичные спектры протонов отдачи для различных типов оптических стекол, показаны результаты их обработки с целью получения концентрационного профиля водорода.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Подробное описание методики измерений содержится в работе^{1/}. Пучок ионов гелия от ускорителя коллимировался двумя диафрагмами диаметром 0,5 мм и попадал на мишень, установленную на многопозиционном держателе. Конструкция держателя позволяла установить угол наклона поверхности мишени к оси пучка α в интервале $0 \div 90^\circ$ с погрешностью не более $0,2^\circ$. Число частиц, падающих на мишень, определялось интегратором тока по измерению заряда, переносимого пучком на мишень за время экспозиции, с погрешностью $3 \div 5\%$. Измерения проводились при энергии ионов гелия 2,2 и 2,4 МэВ; ток пучка составлял $10 \div 20$ нА. Под углом θ по отношению к падающему пучку на подвижном кронштейне был установлен кремниевый поверхностно-барьерный детектор для измерения протонов отдачи. Упруго рассеянные мишенью ионы гелия задерживались алюминиевой фольгой толщиной 9,4 мкм. Энергетическое разрешение детектора для α -частиц с энергией 5,49 МэВ от ${}^{238}\text{Pu}$ составляло 17 кэВ. Спектры записывались в памяти ЭВМ MERA-60/30, а последующая обработка проводилась на ЭВМ PDP-11/70. Измерения выполнены в условиях локального вымораживания паров углеводородов вблизи мишени. Вымораживание осуществлялось с помощью охлаждаемого жидким азотом медного цилинд-

ра 80 мм, который находился внутри тщательно полированного алюминиевого экрана диаметром 120 мм.

В качестве мишеней использовались тонкие полированные пластины исследуемых оптических стекол размером 15x15x1,5 мм. Для снятия электрического заряда на предварительно обезжиренную поверхность мишеней напылялся слой алюминия толщиной $\sim 100 \text{ \AA}$. Для каждой мишени измерения проводились при тех значениях углов $\alpha = 2,5^\circ$; $4,5^\circ$; 15° и соответственно при $\theta = 10^\circ$; 10° и 30° . При угле падения пучка на мишень $\alpha = 2,5^\circ$ глубина зондирования мала и большую часть ее занимает поверхностный слой осаждающихся на мишень углеводородных соединений, присутствующих в вакуумной системе. Вместе с тем при скользющем угле падения достигается высокое разрешение по глубине. При больших углах падения пучка на мишень ($\alpha = 15^\circ$) спектр протонов отдачи содержит информацию и о более глубоких слоях, где влияние поверхностных загрязнений уже не сказывается. Однако разрешение по глубине при этом несколько ухудшается. Измерение спектров протонов отдачи было выполнено для 50 образцов различных оптических стекол.

МЕТОДИКА РАСЧЕТА КОНЦЕНТРАЦИОННОГО ПРОФИЛЯ ВОДОРОДА

Обработка спектров протонов отдачи с целью получения концентрационного профиля водорода проводилась на ЭВМ по программе ERDM, подробно описанной в работе^[2]. В процессе обработки зондируемая глубина исследуемых образцов условно разбивалась на определенное число слоев (≤ 25) с постоянной в пределах слоя концентрацией водорода. Толщина слоя выбиралась таким образом, чтобы тормозные способности в пределах слоя можно было считать постоянными. Программа допускает наличие не более пяти элементов в химическом составе каждого слоя, одним из которых является водород. Поэтому реальный состав каждого образца, представляющего собой многокомпонентную систему, заменялся четырехэлементным модельным составом. Модельный состав подбирался таким образом, чтобы тормозная способность образца этого состава совпадала с тормозной способностью реального образца с погрешностью $5 \div 10\%$. На основании принятого модельного состава рассчитывался теоретический спектр протонов отдачи, который затем сравнивался с экспериментальным. Путем последовательных приближений уточнялось содержание водорода в образце и определялся его концентрационный профиль. При определении соотношения между глубиной залегания водорода и номером канала на спектре использовались реально измеренные плотности стекол.

В дополнение к используемому в программе визуальному способу сравнения теоретического и экспериментального спектров протонов отдачи на графическом дисплее ЭВМ в программу был введен сег-

мент автоматического сравнения. В результате программа вычисляла концентрацию водорода в слоях итерационным способом с использованием нормировки теоретического спектра к экспериментальному на каждом этапе приближения. Как правило, после 5-6 итераций достигается достаточно хорошее совпадение спектров. Результат подгонки представляется в виде гистограммы, описывающей глубинный профиль концентрации водорода. Необходимые для расчетов тормозные способности для протонов и ионов гелия заимствованы из таблиц^[3].

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

В работе исследовались оптические стекла: свинцовосиликатные модельного состава (ат.%) : O-63, Si-25, Ba-5, Pb-7, исходное и восстановленное в атмосфере водорода, и три группы фосфатных стекол модельных составов (ат.%) :

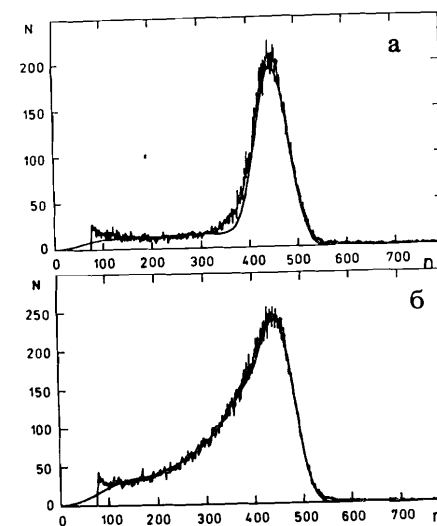
- 1) O-67, P-23, La-3, K-7;
- 2) O-67, P-21, Na-10, Al-2;
- 3) O-69, P-20, Ce-5, Si-6.

Результаты исследований показаны на рис. 1-8, где приведены экспериментальные спектры и результаты подгонки. Все спектры нормированы на одинаковое значение тока падающих на мишень частиц.

На рис. 1 даны экспериментальные спектры протонов отдачи и результаты их подгонки для исходного и восстановленного в атмосфере водорода свинцовосиликатного стекла. Измерения проводились при энергии ионов гелия 2,2 МэВ. На рис. 1а (исходное стекло) пик в высокоэнергетической области спектра обусловлен наличием углеводородных загрязнений на поверхности образца. Остальная часть спектра представляет собой вклад водорода, содержащегося в стекле. Эта часть спектра наилучшим образом описывается в рамках модели с равномерным распределением водорода по глубине.

Спектр протонов отдачи, измеренный на образце восстановлен-

Рис. 1. Энергетические спектры протонов отдачи, измеренные при $\alpha = 15^\circ$ и $\theta = 30^\circ$ на образцах исходного (а) и восстановленного в атмосфере водорода (б) свинцовосиликатного стекла, и результаты их подгонки. N – счет в канале, n – номер канала анализатора импульсов.



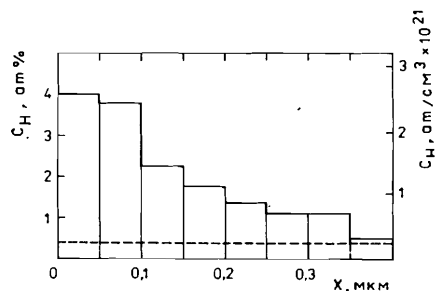


Рис. 2. Концентрационный профиль водорода в свинцовосиликатном стекле: пунктирная линия – исходное; сплошная линия – восстановленное. (Образцы те же, что и на рис. 1).

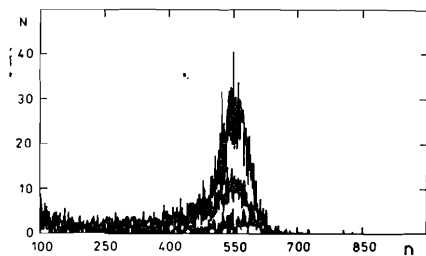


Рис. 3. Спектры протонов отдачи, измеренные на различных образцах цериевофосфатного стекла при $\alpha = 15^\circ$ и $\theta = 30^\circ$. N – счет в канале, n – номер канала анализатора импульсов.

ного в атмосфере водорода стекла (рис. 1б), значительно отличается от спектра, измеренного для исходного стекла. Наилучшая подгонка достигнута для неравномерного распределения водорода с учетом наличия поверхностного слоя водорода, обусловленного загрязнением. Различия в распределении водорода в исходном и восстановленном стекле отчетливо видны на рис. 2, где приведены расчетные профили концентрации водорода, причем поверхностный слой, обусловленный загрязнениями, исключен. Хорошо видно, что в восстановленном стекле концентрация водорода возросла по сравнению с исходным на всей анализируемой глубине. Увеличение концентрации особенно значительно вблизи поверхности образца. Измерения для фосфатных стекол проводились при энергии ионов гелия 2,4 МэВ. На рис. 3 показаны три спектра протонов отдачи, измеренные на образцах цериевофосфатных

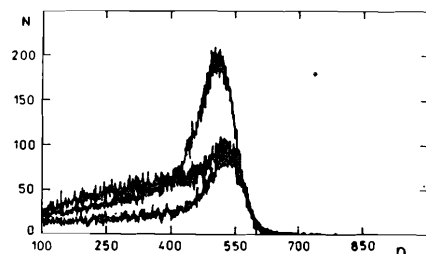


Рис. 4. Спектры протонов отдачи, измеренные на различных образцах натриевофосфатного стекла при $\alpha = 15^\circ$ и $\theta = 30^\circ$. N – счет в канале, n – номер канала анализатора импульсов.

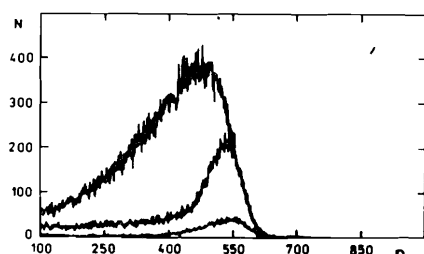
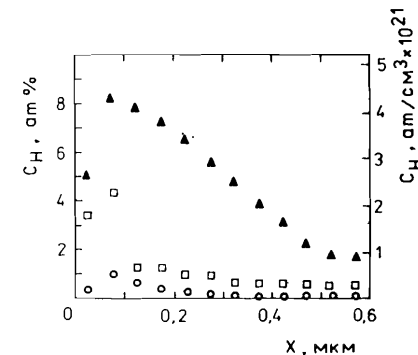


Рис. 5. Спектры протонов отдачи, измеренные на различных образцах лантановофосфатного стекла при $\alpha = 15^\circ$ и $\theta = 30^\circ$. N – счет в канале, n – номер канала анализатора импульсов.

Рис. 6. Концентрационные профили водорода в различных образцах лантановофосфатного стекла.



стекло. Они отличаются различной степенью загрязненности поверхности, а содержание водорода в стекле находится на уровне предела обнаружения, который составляет $\sim 0,1$ атомного процента.

На рис. 4 даны три спектра, измеренные на образцах натриевофосфатных стекол. Они указывают на близкое к равномерному распределению водорода в стекле и различную степень загрязненности образцов. Содержание водорода в образцах находится в пределах $0,5 \div 1,0$ атомного процента.

На рис. 5 приведены спектры протонов отдачи, измеренные на различных образцах фосфатного стекла с высоким содержанием La_2O_3 . Соответствующие концентрационные профили водорода показаны на рис. 6. Отчетливо видна разница в содержании водорода на глубинах до 0,6 мкм в разных образцах. Максимальная концентрация достигает ~ 10 атомных %, минимальная находится на уровне предела обнаружения.

На всех спектрах видно, что максимальная концентрация водорода наблюдается в поверхностном слое. В расчетах принималось, что на поверхности образцов имеется пленка, в состав которой входят в качестве основных компонентов углерод, кислород и водород. Относительное количество атомов водорода в этом слое и его толщина определялись на основании подгонки экспериментальных спектров протонов отдачи. Расчет показывает,

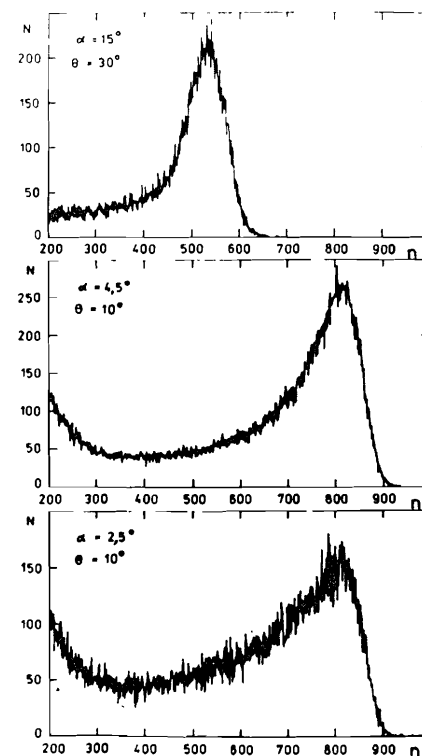


Рис. 7. Спектры протонов отдачи, измеренные на образце лантановофосфатного стекла в разных геометрических условиях.

что потери энергии налетающих ионов в этом слое составляет для разных случаев $25 \div 100$ кэВ. Детальное исследование распределения водорода в поверхностных слоях образца проводилось путем уменьшения угла падения ионов на мишень. На рис. 7 показаны спектры, измеренные на образце лантановофосфатного стекла в разных геометрических условиях. Смещение в сторону высоких энергий спектров, измеренных при $\theta = 10^\circ$, по сравнению со спектром при $\theta = 30^\circ$ обусловлено кинематикой. При уменьшении угла α происходит уширение поверхностного пика, который при $\alpha = 2,5^\circ$ становится существенно асимметричным, что и характеризует особенности распределения водорода в приповерхностном слое. Зависимость масштаба глубины спектров от выбранных геометрических условий опыта показана на рис. 8. Очевидно, что масштаб глубины в поверхностном слое несколько иной, чем в образце.

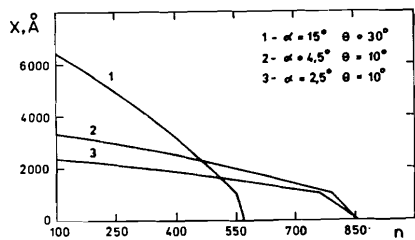


Рис. 8. Масштаб глубины спектра протонов отдачи, измеренного на образце лантановофосфатного стекла в разных геометрических условиях. n — номер канала анализатора импульсов.

Полученные результаты показывают, что метод протонов отдачи может с успехом применяться для исследования концентрационного

профиля водорода в оптических стеклах на глубинах до 1 мкм. Изменяя угол падения ионов на мишень, можно исследовать распределение водорода на большей или меньшей глубине. При этом разрешение по глубине также меняется. Предел обнаружения водорода в оптических стеклах составляет $\sim 0,1$ атомных %. Относительная ошибка в определении концентрации — 20%.

Авторы выражают благодарность группе эксплуатации электростатического ускорителя ЭГ-5 ОИЯИ за обеспечение бесперебойной работы ускорителя.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ильхамов Р.А. и др. Сообщение ОИЯИ, 14-86-807, Дубна, 1986.
2. Ильхамов Р.А. и др. Сообщение ОИЯИ, P10-86-774, Дубна, 1986.
3. Ziegler J.F. *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*. Vol.3, 4. Pergamon Press, New York, 1977.

Рукопись поступила в издательский отдел
29 декабря 1987 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

Д13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.
Д2-84-366	Труды 7 Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1984.	4 р. 30 к.
Д1,2-84-599	Труды VII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1984.	5 р. 50 к.
Д17-84-850	Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984. (2 тома)	7 р. 75 к.
Д11-85-791	Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1985.	4 р. 00 к.
Д13-85-793	Труды XII Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна, 1985.	4 р. 80 к.
Д4-85-851	Труды Международной школы по структуре ядра. Алушта, 1985.	3 р. 75 к.
Д3,4,17-86-747	Труды V Международной школы по нейтронной физике Алушта, 1986.	4 р. 50 к.
—	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984. (2 тома)	13 р. 50 к.
Д1,2-86-668	Труды VIII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1986. (2 тома)	7 р. 35 к.
Д9-87-105	Труды X Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1986. (2 тома)	13 р. 45 к.
Д7-87-68	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Дубна, 1986.	7 р. 10 к.
Д2-87-123	Труды Совещания "Ренормгруппа - 86". Дубна, 1986.	4 р. 45 к.
Д4-87-692	Труды Международного совещания по теории малочастичных и кварк-адронных систем. Дубна, 1987.	4 р. 30 к.
Д2-87-798	Труды VIII Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1987.	3 р. 55 к.
Д14-87-799	Труды Международного симпозиума по проблемам взаимодействия мюонов и пионов с веществом. Дубна, 1987	4 р. 20 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу: 101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79. Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований.

**ТЕМАТИЧЕСКИЕ КАТЕГОРИИ ПУБЛИКАЦИЙ
ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ**

Индекс	Тематика
1.	Экспериментальная физика высоких энергий
2.	Теоретическая физика высоких энергий
3.	Экспериментальная нейтронная физика
4.	Теоретическая физика низких энергий
5.	Математика
6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия
7.	Физика тяжелых ионов
8.	Криогеника
9.	Ускорители
10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных
11.	Вычислительная математика и техника
12.	Химия
13.	Техника физического эксперимента
14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами
15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях
16.	Дозиметрия и физика защиты
17.	Теория конденсированного состояния
18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники
19.	Биофизика

Ильхамов Р.А. и др.

P14-87-936

Исследование концентрационного профиля водорода в оптических стеклах

Приведены результаты определения концентрационного профиля водорода в оптических стеклах методом детектирования протонов отдачи, выбиваемых из мишени налетающими ионами ^4He . Концентрационный профиль водорода вычислялся путем моделирования на ЭВМ энергетического спектра протонов отдачи и сравнения его с экспериментальным. Исследовано содержание водорода в различных типах фосфатного стекла, а также изменение концентрационного профиля водорода в поверхностных слоях свинцовосиликатного стекла в результате термической обработки. Работа выполнена на электростатическом ускорителе ЭГ-5 ОИЯИ с энергиями ионов 2,2 и 2,4 МэВ.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ
Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод авторов

P'khamov R.A. et al.

P14-87-936

Depth Profile Determination of Hydrogen in Optical Glasses

The result of the hydrogen depth profile determination in optical glasses by the proton elastic recoil detection using 2.2 and 2.4 MeV ^4He ion beam from the Van de Graaf generator of JINR are presented. Concentration profile of hydrogen was calculated by modelling the energy spectrum of recoiled protons and comparison it with the experimental one. The hydrogen contents in various types of phosphate glasses and the influence of thermal annealing on the concentration profile of hydrogen in the surface layers of lead-silicate glasses are investigated.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987