

基于 Voigt 函数拟合的离子激发发光光谱分峰方法

赵国强¹, 仇猛淋^{1*}, 张金福¹, 王庭顺¹, 王广甫^{1,2*}

1. 北京师范大学核科学与技术学院, 射线束教育部重点实验室, 北京 100875
2. 北京市辐射中心, 北京 100875

摘要 离子激发发光(IBIL)分析作为一种实时原位的光谱分析技术, 由于其对样品内部结构的敏感性, 给我们分析样品光谱谱峰信息带来了一定的困难。为了准确地对离子激发发光能谱进行分峰以便更加清晰地判断材料内部不同缺陷的发光中心, 提出了一种利用 Voigt 函数, 通过 L-M(levenberg-marquardt)非线性最小二乘算法对 100 和 200 K 温度时 ZnO 的 IBIL 能谱中深能级发射(DBE)峰进行分峰的方法。通过对比 Gauss 函数和 Voigt 函数对能谱拟合后峰位随注量的波动情况, 发现使用 Voigt 函数拟合得到的峰位更加稳定, 并且收敛速度更快。同时通过对使用 Voigt 函数拟合后得到的峰中心位于 1.75, 1.95 和 2.10 eV 三个子峰的高斯函数半高宽与洛伦兹函数半高宽比较, 发现洛伦兹函数半高宽约为高斯函数半高宽的 1/10, 而且 100 K 时的 1.95 eV 峰, 200 K 时 1.75 和 1.95 eV 峰, 其洛伦兹峰半高宽数值为 10^{-10} 量级以下, 说明其中非均匀展宽(高斯展宽)仍然是谱峰展宽的主要机制; 而电子与声子散射作用是洛伦兹展宽的主要机制。对于涉及导带中大量电子的 2.10 eV 子峰, 其在 200 K 时洛伦兹函数半高宽明显大于 100 K 时, 由于在温度较高时, 由于晶格热振动加剧, 且电子热运动加强, 增大了散射概率, 导致电子与声子的散射作用加强, 从而对洛伦兹谱线进一步展宽。而峰中心位于 1.75 eV 的红光, 其主要与 V_{Zn} 相关, 在 100 K 时其子峰的洛伦兹半高宽为 0.02 eV, 但在 200 K 时变得极小, 这可能是由于 100 K 时 V_{Zn} 束缚的电子或激子在 200 K 获得足够的热能摆脱了 V_{Zn} 束缚, 减弱了与周围的晶格的散射作用, 从而使得洛伦兹展宽变得极弱。实验结果表明 Voigt 函数更加适用于 IBIL 能谱拟合分峰, 这也为以后 IBIL 技术应用于其他材料内部结构能谱分析提供了可借鉴的依据。

关键词 离子激发发光; Voigt 函数拟合; 谱线展宽; 光谱学

中图分类号: O582 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2022)11-3512-07

引言

离子激发发光分析(ions beam induced luminescence, IBIL)是利用加速器产生的离子束作为激发源, 在离子轰击样品表面过程中实时原位测量外层电子跃迁产生的光子波长分布来确定样品内部结构以及杂质的相关信息的一种光谱分析技术^[1-2]。在实际的科研工作当中, IBIL 作为一种实时原位监测方法, 可以给出样品内部点缺陷随注量的演变情况, 以此来探究样品结构在不同温度以及不同注量下的演变^[3]; 同时谱峰中心的位移与材料的内部点缺陷种类和浓度都有密切联系^[4]。一般同一种材料其内部本征点缺陷和杂质种类较多, 且在 MeV 离子轰击下也会产生一定缺陷, 这些缺陷发

光中心的能量十分相近以至于造成谱峰的叠加^[5], 因此需要对实验中测量到的光谱进行分峰处理以获得更加详细的缺陷信息。

目前大多数研究者在利用相关软件对 IBIL 光谱进行分析时通常将强度(I)随波长(λ)的变化 $I(\lambda)d\lambda$ 转换到强度(I)随能量(E)的变化 $I(E)dE$ ^[6]之后再利用高斯函数拟合进行分峰处理, Qiu 等将 $LiAlO_2$ 的 IBIL 能谱利用高斯函数拟合分峰处理^[7]; Luo 等和 Zheng 等均利用高斯函数拟合对 ZnO 的 IBIL 能谱分峰^[3, 5]; Epie 等利用高斯函数对负离子注入 ZnO 后的 IBIL 能谱进行拟合^[8]; 也有少数研究者直接利用 IBIL 光谱进行分析, Srivastava 等直接利用氧化锆的 IBIL 光谱进行分析处理^[9]。上述基于高斯拟合的分峰方法得以应用的原因是人们普遍认为能级之间跃迁发射光子的能量呈高斯

收稿日期: 2021-09-13, 修订日期: 2022-02-18

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目(11905010), 中央高校基本科研业务费专项资金项目(2018NTST04)资助

作者简介: 赵国强, 1996 年生, 北京师范大学核科学与技术学院博士研究生 e-mail: 645630072@qq.com

* 通讯作者 e-mail: 88088@bnu.edu.cn; 11112020052@bnu.edu.cn

分布, 而本质上当只有能级间跃迁存在的情况下, 才属于洛伦兹分布; 由于仪器影响和样品特性使得测量得到的能谱不仅包含高斯分布还含有洛伦兹分布, 但却很少有人在选择拟合函数的过程中分析其应用背后的物理机制以及适用场合, 同时并不是所有的 IBIL 能谱都适用于高斯函数拟合, 而且在一些条件下使用高斯函数拟合 IBIL 能谱时得到的峰中心波动较大, 不能准确地对能谱进行分峰。考虑到样品特性、实验条件以及拟合的准确性, 我们不能再采用单一的高斯线型拟合对 IBIL 能谱进行分峰, 而是要引入一种既包含洛伦兹线型又包含高斯线型的谱线, 即 Voigt 线型, 它是高斯线型与洛伦兹线型的卷积, 洛伦兹线型和高斯线型是 Voigt 线型的两种特殊情况。

1 原理

目前谱线的线型以及线宽等因素与粒子间相互作用, 能级分布和温度等周围环境因素密切相关, 而谱线强度则与能级间跃迁概率相关^[10]。目前谱线展宽大致可以分为三类: (1) 以谱线自然线宽为代表的均匀展宽, 即激发态电子振幅随机变化-消布居过程(洛伦兹线型)^[11]; 这是发射谱线的固有宽度, 若不使用特殊的专门技术是无法观察到仅有自然展宽的洛伦兹谱线, 这主要是因为自然展宽很容易被其他展宽所掩盖^[12]; (2) 半导体中存在的缺陷, 应力, 非故意掺杂引入的杂质等都会对其周围的原子产生扰动, 导致跃迁频率具有一定的分布范围, 从而造成非均匀展宽(高斯线型)^[11], 这是引起谱线展宽的重要因素, 在可见光和紫外光区域, 非均匀线宽超过自然线宽约两个数量级^[13], 这也是为什么一般自然展宽无法观察到的原因; (3) 综合展宽, 上述两种展宽均是假设只有一种展宽机制存在, 而实验中除上述两种展宽机制外往往还存在其他展宽机制且相互间有一定联系; 比如半导体在 MeV 质子轰击下导带中会出现大量电子, 这些电子会与声子发生散射作用引起辐射电磁波相位的变化, 即失相过程(洛伦兹线型)^[11]; 晶格离子核自旋跳变引起一些非故意掺杂离子位置上磁场起伏, 从而改变自旋能级劈裂间距, 导致跃迁频率发生变化, 即动态微扰过程, 造成谱线展宽(高斯线型)^[11]; 离子束能散导致的功率展宽(高斯线型)和实验中仪器相关的实验因素展宽等(高斯或洛伦兹分布)。

此外, IBIL 分析技术对于样品激发光谱具有很高的灵敏度, 而且其经常用于分析在辐照条件下的半导体等样品发光, 半导体中存在的缺陷以及杂质导致了样品光谱的复杂性; 且谱线的展宽机制复杂多样, 影响因素较多, 对应的线型描述既有高斯线型又有洛伦兹线型, 单一高斯函数拟合已经不再适用于 IBIL 能谱分析, 因此引入既包含高斯线型又包含洛伦兹线型的 Voigt 线型显得尤其重要和迫切。与传统单一线型(高斯线型、洛伦兹线型)的分峰方法相比, 利用 Voigt 线型对 IBIL 能谱进行分峰与实际的展宽机制更加匹配, 同时可以在分峰的同时得到不同线型的详细信息, 结合实际测量条件以及样品信息可以更加准确地确定展宽机制与样品缺陷情况; 这也为后续对 IBIL 能谱的分峰处理开辟了一条新的道路。

自 1912 年 Voigt 提出光谱谱线的 Voigt 线型以来, 很多研究者对此展开细致的研究分析, 并且它在各个领域的应用使得它不断受到关注。国外很多研究者提出的用计算方法试着解决 Voigt 线型函数问题得到了各界的广泛认可, 其中 Shinotsuka 等研究了一种基于贝叶斯信息准则(BIC)利用 Voigt 拟合方法对各种人工光谱进行谱分解, 推导出了基于 Voigt 函数的参数置信区间近似模型公式^[14]; Uchiyama 将 Voigt 线型应用到计算地球大气中吸收线的光谱吸收系数中, 且该方法已被应用于大气辐射领域的若干问题^[15]; Kielkopf 利用数学方法描述了 Voigt 函数的近似, 在描述它的自变量的整个域上是有效的, 并且精确到函数峰值的 10^{-4} 量级^[16]。国内的很多学者将 Voigt 线型应用到对不同谱线的处理当中, 张鹏等将 Voigt 线型应用到对磷矿镁元素分析中, 使用后使镁元素的定量分析整体准确性得到了有效提升^[17]; 刘铭晖等基于 Voigt 函数拟合对拉曼光谱进行谱峰识别, 在误判率为 5% 情况下, 准确率提高了 60%^[18]; 张庆礼等利用 Voigt 函数对 X 射线衍射双峰进行拟合, 其收敛速度和稳定性更好^[19]。本文采用 Voigt 函数应用 L-M(levenberg-marquardt)非线性最小二乘算法对 2 MeV 质子激发下的单晶 ZnO 样品的 IBIL 能谱进行分峰处理, 确定峰中心位置和半高宽等。

2 实验部分

实验中的样品为合肥科晶材料有限公司生产的单晶 ZnO (10 mm×10 mm×0.45 mm, 晶向〈0 0 0 1〉, 双面抛光)。IBIL 分析装置基于北京师范大学 GIC4117 2×1.7 MV 串列加速器^[20], 并利用海洋光学 QE-Pro 光谱仪收集 2 MeV H⁺ 激发产生光信号, 每个光谱的积分时间为 0.5 s。实验中温度控制由 Instec 公司定制的温度控制台完成, 可实现 100~873 K 范围内的精确温度控制^[21], 控制精度为 ±1 K。本实验中选用 2 MeV H⁺ 束, 束斑直径为 6.7 mm, 束流大小为 10 nA, 离子通量为 1.773×10^{11} ions·cm⁻²·s⁻¹。实验中选取温度点为 100 和 200 K, 在上述两个温度时均采谱 4 150 个。

3 结果与讨论

分峰是开展光学特性研究学者的必备技能, 而不同的光谱类型往往对应着不同谱峰分析方法, 拉曼光谱通常采用洛伦兹线型拟合^[18]; X 射线光电子能谱则需要先扣除本底再进行多高斯拟合操作^[22]; 光致发光光谱则通常采用高斯拟合分峰^[23]; 无论应用哪种线型拟合都需要根据分析方法的物理机制以及实际情况进行选择。近些年来, IBIL 光谱的谱峰分解通常采用高斯拟合, 这主要是由于人们普遍认为能级之间的跃迁能量分布属于高斯分布, 但其实并没有考虑到上述讨论过的失相过程, 动态微扰过程, 功率展宽和实验因素展宽, 因此在考虑多种展宽机制相互作用的情况下, 我们采用 Origin 中的 Voigt 函数, 通过 L-M 算法对谱峰进行更加准确, 精细地拟合。

Voigt 函数是高斯函数与洛伦兹函数的卷积形式, 无具

体表达式, 只能利用数值方法对其进行描述, 式(1)为 Origin 中给出的 Voigt 函数的数值表达式, 式(2)和式(3)分别为洛伦兹函数表达式和高斯函数表达式,

$$y = y_0 + (f_1 f_2)(x) = y_0 + A \frac{2\ln 2}{\pi^{3/2}} \frac{\omega_L}{\omega_G^2} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2}}{\left(\sqrt{\ln 2} \frac{\omega_L}{\omega_G}\right)^2 + \left(\sqrt{4\ln 2} \frac{x-x_c}{\omega_G} - t\right)^2} dt \quad (1)$$

$$f_1(x) = \frac{2A}{\pi} \frac{\omega_L}{4(x-x_c)^2 + \omega_L^2} \quad (2)$$

$$f_2(x) = \sqrt{\frac{4\ln 2}{\pi}} \frac{e^{-\frac{4\ln 2}{\omega_G^2} x^2}}{\omega_G} \quad (3)$$

式中, A 为 Voigt 函数的峰面积, ω_L 为洛伦兹峰半高宽, ω_G 为高斯峰半高宽, x_c 为峰中心位置, y_0 为初始值。

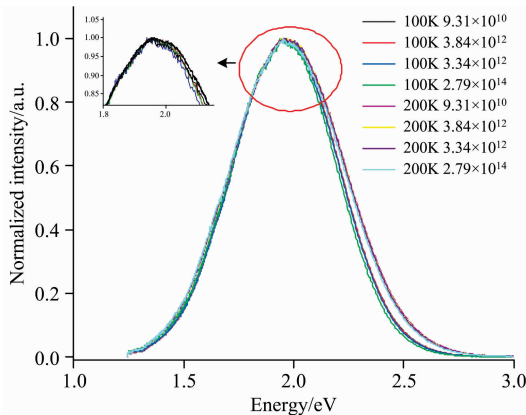


图 1 不同注量下 100 和 200 K 时的 IBIL 归一化能谱
Fig. 1 Normalized IBIL energy spectrum at different fluences at 100 and 200 K

在 100 和 200 K 温度下利用 2 MeV H^+ 束对单晶 ZnO 样品进行激发, 并实时收集不同注量下的 IBIL 光谱。实验中我们在上述两个温度点下分别选取 4 个注量点的 IBIL 光谱进行归一化处理, 如图 1 所示。从图中可以明显观察到同一温度下不同注量时的 IBIL 能谱深能级发射 (deep-band-emission, DBE) 峰的发光中心无明显移动, 说明注量不会对发光中心位置产生影响, 这也为下一步对 DBE 峰的分峰提供了依据。另外, 对于同一注量下不同温度时的 IBIL 能谱 DBE 峰也无明显移动, 同时说明在 100 和 200 K 时其 DBE 峰峰中心位置近乎一致。对于 ZnO 样品的 DBE 峰, Zheng 等同样利用 IBIL 分析了 ZnO 室温下的发光情况, 并将 DBE 峰分为峰中心分别位于 1.75 和 2.10 eV 两个子峰^[5]; 另外 Luo 等在室温下观察到了 ZnO 的 1.90 eV 发光中心^[6]; 而且 Ahn 等利用光致发光 (PL) 同样在 ZnO 光谱中观察到 1.90 和 2.10 eV 两个发光中心^[4]; 因此我们选择将 ZnO 的 DBE 峰分为三个子峰, 峰中心分别位于 1.75, 1.95 和 2.10 eV, 分别对应不同缺陷的发光。图 2 所示为分别利用 Gauss 和 Voigt 函数对 100 和 200 K, 注量为 $6.22 \times 10^{11} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$ IBIL 能谱分峰示意图, 绿线和红线分别为利用 Gauss 和 Voigt 函数拟合得到的子峰。图 2(a) 可以看出利用 Gauss 函数拟合得到的结果存在两个峰中心位于 2.00 eV 的发光峰, 在一些其他注量下运用 Gauss 拟合得到的峰中心位置波动较大; 相比之下, Voigt 函数却能很好对 ZnO 的 DBE 峰进行分解, 而且峰中心同样位于 1.75, 1.95 和 2.10 eV。从图 2(b) 可以看出, 200 K 时的 DBE 能谱能够被 Gauss 和 Voigt 两种函数分解, 而且拟合后得到的峰中心位置几乎一致, 但与 Gauss 函数相比, Voigt 函数在达到收敛时的迭代次数更少, 一般为 20 次左右, 而 Gauss 函数迭代次数为 80 次左右。

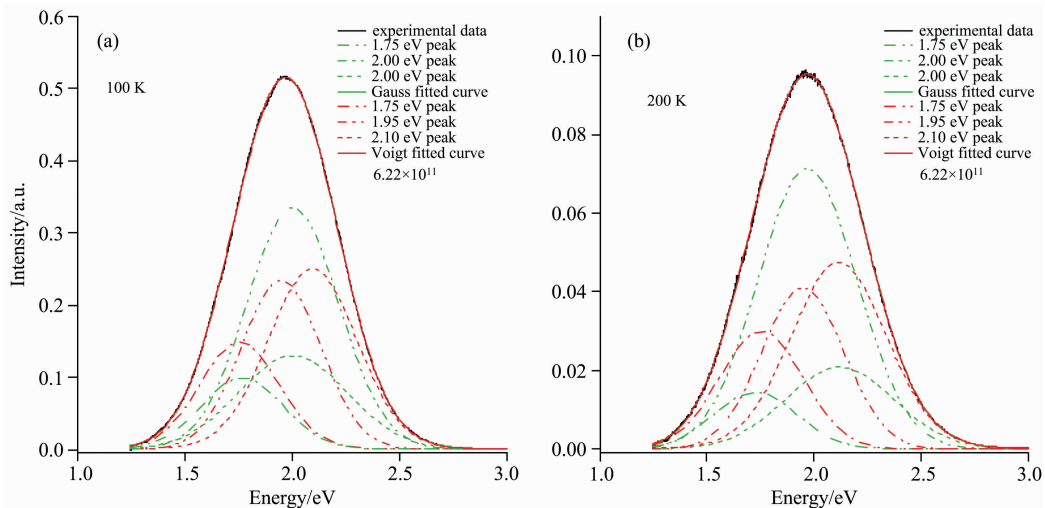


图 2 Gauss 和 Voigt 函数分别对 (a) 100 K 和 (b) 200 K, 注量为 $6.22 \times 10^{11} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$ IBIL 能谱的分峰示意图
绿线和红线分别为 Gauss 和 Voigt 函数的拟合峰

Fig. 2 Schematic diagram of Gauss and Voigt functions for IBIL energy spectrum of (a) 100 K and (b) 200 K with fluence of $6.22 \times 10^{11} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$ peak splitting

The green and the red line are the results obtained by using Gauss and Voigt functions to separate peaks, respectively

为更加清晰地判断 Gauss 函数拟合和 Voigt 函数拟合两种分峰方法对 ZnO 的 IBIL 光谱分峰效果, 按照图 2 分峰方

法对不同注量下的能谱依次进行拟合, 得到的峰位随注量的演变如图 3 所示。从图 3(a) 和图 3(b) 可以看出, 无论 100 K

还是 200 K 温度下的 IBIL 能谱, 使用 Gauss 函数拟合得到的峰中心位置随注量波动较大; 甚至在 100 K 有时会出现两个峰中心在同一位置; 对比之下, 使用 Voigt 函数拟合后得到的峰中心位置随注量无明显变化, 而且在 100 和 200 K 拟

合后得到的峰中心位置几乎一致, 同时也表明两个温度点对应的缺陷发光中心相同, 这也与图 1 中两个温度下的 DBE 峰无明显移动相对应。

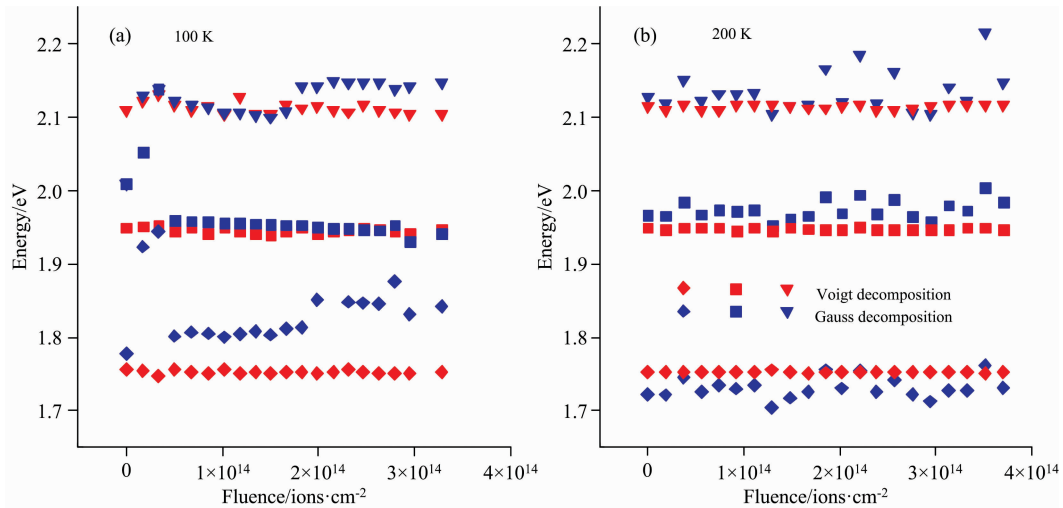


图 3 使用 Gauss 和 Voigt 函数分别对 (a) 100 K 和 (b) 200 K 时的 IBIL 能谱分峰峰位随注量演变

Fig. 3 The peak position using Gauss and Voigt functions to split the IBIL spectra at (a) 100 K and (b) 200 K evolves with fluence

Voigt 函数是 Gauss 函数和 lorentz 函数的卷积形式, 那么使用 Voigt 函数拟合后得到的每一个子峰都可能既含有高斯峰又含有洛伦兹峰, 也就意味着包含不同的展宽机制。近年来对于 ZnO 发光特性的研究较多, 而且对于其发光机制也日趋完善, 对于峰中心位于 1.75 eV 的红光, 其主要与 V_{Zn} 相关^[5, 24-25]; 而峰中心位于 1.95 eV 的橙红光, 其主要来自于 Zn_i 到 O_i 的跃迁^[4, 26]; 对于峰中心位于 2.10 eV 的绿光, 其主要来自于导带到 V_o 以及 Zn_i 到 V_o 两种跃迁的叠加, 随着温度降低, 更多电子偏向于从导带释放到 Zn_i , 进而与 V_o 上的空穴辐射复合^[4, 27]。式(1)中提到的 ω_L 与 ω_G 分别表示使用 Voigt 函数分峰后得到的每一个子峰中洛伦兹峰半高宽和高斯峰半高宽。图 4 所示为峰中心位于 1.75, 1.95 和 2.10 eV 三个子峰的 ω_L 和 ω_G 在 100 和 200 K 时随注量的演变。图 4(a) 和 (b) 表示分别在 100 和 200 K 时 IBIL 能谱中 ω_G 值随注量的演变, 从图中可以明显观察到在两个不同温度点下, 其三个子峰的高斯半高宽不尽相同, 说明晶体内不同缺陷对应的能级展宽机制仍存在差异; 峰中心位于 2.10 eV 的子峰其高斯半高宽数值明显大于其他两个子峰, 这主要是由于其发光主要来自导带到 V_o 以及 Zn_i 到 V_o 两种跃迁的叠加, 也就对应两个不同的能级分布, 那么在同样的条件下, 其线宽要比其他两个单一来源的子峰要宽; 另外 200 K 时三个子峰的高斯半高宽数值大于 100 K 时半高宽值, 温度升高到 200 K 时, 电子声子的热振动加强, 造成能级展宽, 从而导致半高宽增大。

对于三个子峰的洛伦兹峰半高宽, 如图 4(c) 和 (d), 从图中可以看出其所有子峰洛伦兹峰半高宽明显小于高斯峰半高宽, 大概为高斯峰半高宽数值的 1/10, 而且 100 K 时的 1.95 eV 峰, 200 K 时 1.75 和 1.95 eV 峰, 其洛伦兹峰半高宽数值为 10^{-10} 量级以下, 说明各个子峰的线宽主要来自于高斯展宽, 也就是上述半导体中存在的缺陷, 应力, 非故意掺杂引入的杂质对其周围的原子产生扰动^[11], 导致跃迁频率具有一定的分布范围, 从而造成非均匀展宽, 同时也可能含有动态微扰过程引入的非均匀展宽和功率展宽等。对于峰中心位于 2.10 eV 的子峰, 其在 100 和 200 K 时都存在洛伦兹峰, 而且在 200 K 时, 其半高宽明显高于 100 K 时, 根据上述的几种展宽机制, 其洛伦兹展宽最有可能来自于电子散射声子, 即失相过程(洛伦兹线型)^[11]; 因为 2.10 eV 的子峰涉及导带中的大量电子, 刚被激发到导带的过热电子会受到热振动原子的散射, 从晶格振动中获得或失去能量, 造成能级展宽; 而在温度较高时, 晶格振动加剧, 并且电子热运动加强, 增大了散射概率, 进一步展宽了洛伦兹线型。对于峰中心位于 1.75 eV 的红光, 其主要与 V_{Zn} 相关, 在图 4(c) 中, 在 100 K 时出现其子峰的洛伦兹半高宽为 0.02 eV, 但在 200 K 时变得极小, 这可能是由于 100 K 时 V_{Zn} 束缚了一定量的电子或激子, 与其周围的晶格发生散射, 导致与声子散射作用增强, 从而能级展宽; 而在 200 K 时, 温度升高, 电子或激子获得足够的热动能摆脱了 V_{Zn} 束缚, 从而洛伦兹展宽变得极弱, 但具体机制仍需做进一步探究。

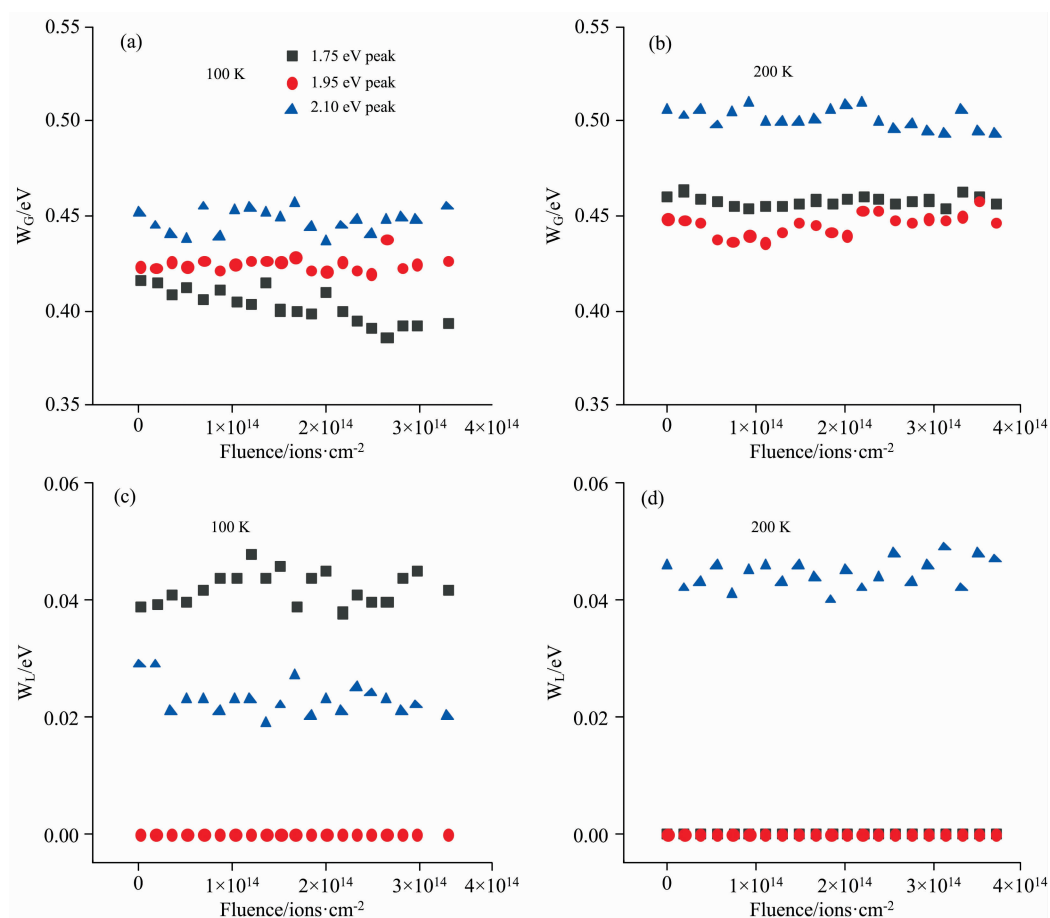


图 4 Voigt 函数对 IBIL 能谱分峰得到的三个子峰洛伦兹峰半高宽 (w_L) 与高斯峰半高宽 (w_G) 随注量演变
(a) 100 K, (b) 200 K 时, 高斯峰半高宽随注量演变; (c) 100 K, (d) 200 K 时, 洛伦兹峰半高宽随注量演变

Fig. 4 The Lorentz peak FWHM (w_L) and Gaussian peak FWHM (w_G) of three sub-peaks obtained by the Voigt function splitting the IBIL energy spectrum evolve with fluence

The FWHM of the Gaussian peak evolves with the fluence at (a) 100 K and (b) 200 K;

The FWHM of Lorentz Peak evolves with the fluence at (c) 100 K and (d) 200 K

4 结 论

为了更加准确地对 IBIL 能谱进行分峰以便于更加清晰地判断不同缺陷的发光中心, 采用 Voigt 函数, 通过 L-M 算法对 100 和 200 K 温度下的 ZnO 的 IBIL 能谱中 DBE 宽峰进行分峰。通过对比 Gauss 函数和 Voigt 函数对能谱拟合后峰

位的波动情况, 得出使用 Voigt 函数拟合得到的峰位更稳定, 并且收敛速度更快。同时通过对使用 Voigt 函数拟合后得到的峰中心位于 1.75, 1.95 和 2.10 eV 三个子峰的高斯半高宽与洛伦兹半高宽比较, 发现其中非均匀展宽即高斯展宽仍然是谱峰展宽的主要机制, 而电子散射声子是洛伦兹展宽的主要机制, 并且在温度较高时, 由于晶格热振动加剧, 导致电子对声子的散射作用加强, 从而使谱线进一步加宽。

References

- [1] Qiu Menglin, Yin Peng, Wang Guangfu, et al. Chinese Physics B, 2020, 29(4): 046106.
- [2] QIU Meng-lin, ZHAO Guo-qiang, WANG Ting-shun, et al(仇猛淋, 赵国强, 王庭顺, 等). Acta Physica Sinica(物理学报), 2020, 69(10): 107801.
- [3] Luo C, Qiu M, Wang G, et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2020, 471: 7.
- [4] Ahn C H, Kim Y Y, Kim D C, et al. Journal of Applied Physics, 2009, 105(1): 013502.
- [5] Zheng L, Wang G F, Qiu M L, et al. Chinese Physics Letters, 2017, 34(8): 087801.
- [6] Wang Y, Townsend P D. Journal of Luminescence, 2013, 142: 202.

- [7] Qiu M, Chu Y, Wang G, et al. *Radiation Measurements*, 2016, 94: 49.
- [8] Epie E N, Chu W K. *Applied Surface Science*, 2016, 371: 28.
- [9] Srivastava S K, Gangopadhyay P, Chinnathambi S, et al. *AIP Advances*, 2020, 10(9): 95228.
- [10] WU Chen(武 臣). Master Dissertation(硕士论文). North China Electric Power University(华北电力大学), 2013.
- [11] XU Xu-rong, SU Mian(徐叙璐, 苏 勉). *Luminescence and Luminescent Materials(发光学与发光材料)*. 1st ed. (第 1 版). Beijing: Chemical Industry Press(北京: 化学工业出版社), 2004. 766.
- [12] LIN Jie-li(林洁丽). Doctoral Dissertation(博士论文). Graduate School of Chinese Academy of Sciences (Wuhan Institute of Physics and Mathematics)[中国科学院研究生院(武汉物理与数学研究所)], 2001.
- [13] ZHANG Qing-guo, YOU Jing-han, HE Jian(张庆国, 尤景汉, 贺 健). *Journal of Henan University of Science and Technology • Natural Science Edition(河南科技大学学报 • 自然科学版)*, 2008, (1): 84.
- [14] Shinotsuka H, Nagata K, Yoshikawa H, et al. *Science and Technology of Advanced Materials*, 2020, 21(1): 402.
- [15] Uchiyama A. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1992, 47(6): 521.
- [16] Kielkopf J F. *Journal of the Optical Society of America* (1930), 1973, 63(8): 987.
- [17] ZHANG Peng, SUN Lan-xiang, YU Hai-bin, et al(张 鹏, 孙兰香, 于海斌, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2020, 40(1): 266.
- [18] LIU Ming-hui, DONG Zuo-ren, XIN Guo-feng, et al(刘铭晖, 董作人, 辛国锋, 等). *Chinese Journal of Lasers(中国激光)*, 2017, 44(5): 0511003.
- [19] ZHANG Qing-li, DING Li-hua, SHAO Shu-fang, et al(张庆礼, 丁丽华, 邵淑芳, 等). *Journal of Synthetic Crystals(人工晶体学报)*, 2009, 38(2): 330.
- [20] WANG Guang-fu(王广甫). *Journal of Modern Instruments(现代仪器)*, 2008, (1): 53.
- [21] QIU Meng-lin, WANG Guang-fu, CHU Ying-jie, et al(仇猛淋, 王广甫, 褚莹洁, 等). Establishment and Application of High and Low Temperature Ion Excited Luminescence Analysis System(高低温离子激发发光分析系统的建立及其应用). Chinese Nuclear Society Annual Conference 2017(中国核学会 2017 年学术年会). Weihai, Shandong Province, China(中国山东威海), 2017. 6.
- [22] SUN Bo-wen, YU Hong-yu, QIAN Dong-jin, et al(孙博文, 余红雨, 钱东金, 等). *University Chemistry(大学化学)*, 2017, 32(8): 53.
- [23] Cui M, Zhang Z, Wang Y, et al. *Luminescence*, 2018, 33(4): 654.
- [24] Djurisić A B, Leung Y H, Tam K H, et al. *Nanotechnology*, 2007, 18(9): 95702.
- [25] Knutsen K E, Galeckas A, Zubiaga A, et al. *Physical Review. B, Condensed Matter and Materials Physics*, 2012, 86(12): 121203.
- [26] Gomi M, Oohira N, Ozaki K, et al. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2003, 42(Part 1, No. 2A): 481.
- [27] Cao B, Cai W, Zeng H. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(16): 161101.

Peak Splitting Method of Ion-Beam-Induced-Luminescence Spectrum Based on Voigt Function Fitting

ZHAO Guo-qiang¹, QIU Meng-lin^{1*}, ZHANG Jin-fu¹, WANG Ting-shun¹, WANG Guang-fu^{1,2*}

1. Key Laboratory of Beam Technology of Ministry of Education, College of Nuclear Science and Technology, Beijing Normal University, Beijing 100875, China
2. Beijing Radiation Center, Beijing 100875, China

Abstract Ions beam-induced luminescence (IBIL) analysis is a real-time in-situ spectroscopy technique. Due to its sensitivity to the internal structure of the sample, it brings us certain difficulties in analyzing the spectral peaks information of the sample. In order to more accurately split the peaks of the IBIL energy spectra to more clearly determine the luminescence centers of different defects of the material, this paper proposes a Voigt function based on the LM (Levenberg-Marquardt) of non-linear least squares algorithm to split the deep band emission peaks in the IBIL energy spectra of ZnO at 100 and 200 K. By comparing the fluctuation of the position of the peak with fluence after the Gauss function and the Voigt function are fitted to the energy spectrum, it is found that the position of the peak obtained by the Voigt function fitting is stable and the convergence speed is fast. At the same time, by comparing the full width at half maximum (FWHM) of the Gaussian function with the FWHM of the Lorentz function of the three sub-peaks of 1.75, 1.95 and 2.10 eV after fitting using the Voigt function, it is found that the FWHM of the Lorentz function is about 1/10 of FWHM of the Gaussian function. Moreover, the 1.95 eV peak at 100 K, 1.75 and 1.95 eV peak at 200 K, the FWHM of the Lorentz peak is below the order of magnitude, indicating that the non-uniform broadening (Gaussian broadening) is still the main mechanism of spectral peak broadening; while the scattering of electrons and phonons is the main mechanism of Lorentz broadening. For the 2.10 eV sub-peak involving a large number of electrons in the

conduction band, the FWHM of the Lorentz function at 200 K is significantly greater than 100 K, and the thermal vibration of the crystal lattice is intensified at a higher temperature, and the thermal movement of electrons is strengthened. It increases the probability of scattering, strengthening the scattering effect of electrons and phonons, further broadening the Lorentz spectrum. The red light with the peak center at 1.75 eV is mainly related to V_{zn} . At 100 K, the FWHM of this is 0.02 eV, but it becomes extremely small at 200 K. This is because bound electrons or excitons get enough thermal kinetic energy at 200 K to get rid of the V_{zn} bond, weaken the scattering effect with the surrounding lattice, so that the Lorentz broadening becomes extremely weak. The experimental results show that the Voigt function is more suitable for IBIL energy spectrum fitting to split peaks, which also provides an example for the future application of IBIL to the energy spectrum analysis of the internal structure of other materials.

Keywords Ion-beam-induced luminescence; Voigt function fitting; Spectrum widening; Spectroscopy

(Received Sep. 13, 2021; accepted Feb. 18, 2022)

* Corresponding authors