УДК 537.5

## ЗАВИСИМОСТЬ МАКСИМАЛЬНОЙ ЭНЕРГИИ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ ВЕЛИЧИНЫ ПРЕДВАРИТЕЛЬНОГО ИЗМЕНЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ ПРИ РАБОТЕ ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ИСТОЧНИКА В ИМПУЛЬСНОМ РЕЖИМЕ

А. Н. Олейник<sup>1,2</sup>, Е. В. Болотов<sup>1</sup>, М. Э. Гильц<sup>1</sup>, О. О. Иващук<sup>1,3</sup>, А. А. Кленин<sup>1</sup>, А. С. Кубанкин<sup>1,3</sup>, А. В. Щагин<sup>1,4</sup>

В данной работе представлены результаты исследования зависимости максимальной энергии рентгеновского излучения от величины предварительного изменения температуры монокристалла танталата лития (LiTaO<sub>3</sub>), который является источником сильного электрического поля при осуществлении пироэлектрического эффекта в условиях вакуума. Измерения проводились в импульсном режиме генерации рентгеновского излучения, заключающегося в предварительном изменении температуры пироэлектрика в высоком вакууме и в использовании дополнительного источника электронов для полной разрядки пироэлектрика. Полученная зависимость демонстрирует, что максимальные возможности генерации рентгеновского излучения пироэлектрическим источником проявляются при применении импульсного режима генерации.

Ключевые слова: пироэлектрический эффект, рентгеновское излучение, танталат лития.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Международная научно-образовательная лаборатория радиационной физики НИУ БелГУ, 308570 Россия, Белгород, ул. Победы, 85; e-mail: andreyoleynik92@mail.ru.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Колледж Ройял Холлоуэй, Лондонский университет, Эгам, Великобритания, TW 20 ОЕХ.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт", 61108 Украина, Харьков, ул. Академическая, 1.

В современной науке и технике есть потребность в компактных ускорителях заряженных частиц и источниках рентгеновского излучения [1–3]. Один из оригинальных способов решения данной задачи – применение пироэлектрического эффекта в монокристаллах ниобата или танталата лития [4–6] или в керамике семейства цирконататитаната свинца [7]. Пироэлектрический эффект заключается в индукции заряда на определенных поверхностях образцов при изменении его температуры [8]. Осуществление этого эффекта в условиях окружающего вакуума (давление 0.1 Торр и ниже) приводит к генерации сильного электрического поля вблизи пироэлектрика с последующей генерацией электронов и ионов, а также рентгеновского излучения [9].

Одним из малоизученных фундаментальных аспектов проявления пироэлектрического эффекта в условиях вакуума является определение корреляции между максимально возможным генерируемым электрическим потенциалом и диапазоном изменения температуры пироэлектрика. Как правило, величину максимального генерируемого электрического потенциала на поверхности пироэлектрика можно оценить по величине максимальной энергии спектра рентгеновского излучения [10]. Из определения пироэлектрического эффекта, количество индуцируемого заряда прямо пропорционально степени изменения температуры, что позволяет предположить такой же характер зависимости и для величины генерируемого электрического потенциала. Однако, известно, что есть несколько механизмов утечек заряда с поверхности пироэлектрика [11] (напр., через боковые поверхности, окружающую среду), вклад которых может с повышением величины электрического поля становиться более весомым, ограничивая величину достижимого электрического поля. Для корректного определения зависимости величины максимального электрического потенциала от диапазона изменения температуры необходимо достижение высокого вакуума, порядка  $10^{-5} - 10^{-6}$  Торр, для того чтобы ограничить утечки заряда через окружающую среду и тем самым создать условия для того, чтобы большая часть заряда осталась на поверхности пироэлектрика. Однако при таком давлении остаточного газа генерация рентгеновского излучения становится гораздо слабее [12], что в итоге не дает корректно оценить максимальный возможный генерируемый электрический потенциал при осуществлении пироэлектрического эффекта в условиях высокого вакуума.

Помочь в решении этой задачи может недавно предложенный способ управления пироэлектрическим источником рентгеновского излучения, заключающийся в модуляции работы источника импульсами электронов от дополнительного источника [12]. После предварительного изменения температуры электроны от дополнительного источника инжектируются в промежуток между пироэлектриком и мишенью, и ускоряются в какую-либо из двух сторон, вызывая усиление эффекта генерации рентгеновского излучения. Такая операция позволяет увеличить пиковую интенсивность генерируемого излучения, как минимум, на два порядка по сравнению со стандартными пироэлектрическими источниками и получить импульсный режим генерации рентгеновского излучения для данного типа источников. Параметры предварительного изменения температуры и инжекции дополнительных электронов могут варьироваться, что позволит осуществлять более контролируемую генерацию рентгеновского излучения при пироэлектрическом эффекте.

В данной работе представляются результаты определения зависимости генерируемого при пироэлектрическом эффекте электрического потенциала на свободной поверхности монокристалла танталата лития (определяется по максимальной энергии рентгеновского излучения) от величины предварительного изменения температуры пироэлектрика. Генерация рентгеновского излучения осуществлялась в импульсном режиме после достижения определенной величины изменения температуры. Пироэлектрик, монокристалл танталата лития (LiTaO<sub>3</sub>) цилиндрической формы (диаметр 20 мм, высота 10 мм, вектор спонтанной поляризации ориентирован вдоль оси цилиндра) был ориентирован таким образом, что при нагреве пироэлектрика на его свободной поверхности индуцировался положительный заряд.

Следует выделить три стадии эксперимента: предварительный нагрев, облучение поверхности при помощи дополнительного эмиттера электронов и естественное охлаждение. Схематичное изменение основных параметров эксперимента (температура пироэлектрика и интенсивность генерируемого рентгеновского излучения) в ходе каждой из стадий представлено на рис. 1(а). Кристалл предварительно разогревался при помощи элемента Пельтье при давлении остаточного газа около  $2 \cdot 10^{-5}$  Topp. После завершения предварительного нагрева включался эмиттер электронов на короткое время (около 15 секунд). В качестве эмиттера использовалась нить накала, напряжение на которой составляло 1 В. Электроны ускорялись к положительно заряженной поверхности пироэлектрика, что приводило к генерации тормозного и характеристического рентгеновского излучения при торможении их на атомах пироэлектрика. Этот процесс схематично показан на рис. 1(б). Далее эмиттер электронов выключался, пироэлектрик естественным образом охлаждался, вызывая индукцию отрицательного заряда на полярной поверхности и генерацию рентгеновского излучения при бомбардировке мишени



Рис. 1: (a) Изменение температуры пироэлектрика и интенсивности генерируемого рентгеновского излучения в ходе эксперимента. Выделяются следующие стадии эксперимента: I – предварительный нагрев пироэлектрика, II – освещение пироэлектрика дополнительным эмиттером электронов, III – естественное охлаждение пироэлектрика. (b) Схема генерации рентгеновского излучения с поверхности пироэлектрика при действии дополнительного эмиттера электронов. 1 – пироэлектрический кристалл танталата лития, 2 – элемент Пельтье, 3 – эмиттер электронов (нить накала), 4 – мишень, 5 – детектор рентгеновского излучения.

ускоренными от поверхности пироэлектрика электронами. В качестве мишени использовалась пластина из нержавеющей стали.

В течение всего времени эксперимента спектр генерируемого рентгеновского излучения регистрировался при помощи кремниевого дрейфового детектора XR-100SDD компании Amptek, который располагался примерно на одном и том же расстоянии от пироэлектрика и мишени. Спектр измерялся в диапазоне 0.5–110 кэВ, пиковое время составляло 4.8 мкс, площадь детектора – 25 мм<sup>2</sup>. Предварительно детектор калибровался при помощи изотопа <sup>237</sup>Np, ширина линии 16.65 кэВ на полувысоте составила 160 эВ. Температура вблизи нижней поверхности пироэлектрика измерялась при помощи термопары К-типа.

В различных измерениях варьировалась величина предварительного изменения температуры пироэлектрика  $\Delta T$ . Спектры рентгеновского излучения, получаемые при различных величинах  $\Delta T$ , сравнивались и анализировались. На рис. 2 показаны спектры рентгеновского излучения, зарегистрированные во время каждой стадии эксперимента:



Рис. 2: Спектры рентгеновского излучения, зарегистрированные при предварительном нагреве (стадия I), облучении дополнительным источником электронов (стадия II) и последующем естественном охлаждении пироэлектрика (стадия III). Во вкладке показана часть спектра с характеристической К-линией тантала, зарегистрированного во время стадии II эксперимента.

предварительного нагрева на  $\Delta T \approx 50$  °C, работы дополнительного эмиттера электронов и естественного охлаждения пироэлектрика. Во время предварительного нагрева наблюдается очень слабая генерация рентгеновского излучения (усредненная интенсивность регистрируемых квантов – не более 150 событий в секунду), при этом энергия излучения не превышает 10 кэВ, никаких характеристических линий не наблюдается. Исходя из данного спектра можно сделать вывод, что генерируемое электрическое поле имеет недостаточную напряженность для генерации рентгеновского излучения с большей энергией. Однако реальная причина слабой генерации рентгеновского излучения заключается в том, что с уменьшением давления остаточного газа остается меньше источников электронов, что способствует длительному хранению заряда на поверхности пироэлектрика.

Включение дополнительного эмиттера электронов при отсутствии активного изменения температуры вызывает массовую генерацию рентгеновского излучения (усредненная интенсивность регистрируемых квантов составляет  $1.1 \cdot 10^5$  квантов в секунду) с максимальной энергией около 90 кэВ. Наблюдаются характеристические линии тантала ( $L_{\alpha}$  8.15 кэВ,  $L_{\beta}$  9.34 кэВ,  $L_{\alpha}$  10.89 кэВ, а также  $K_{\alpha}$  57.53 кэВ, см. вкладку на рис. 2), что подтверждает, что излучение эмиттировало с пироэлектрика. Таким образом, генерация рентгеновского излучения была вызвана именно торможением ускоренных электронов при попадании в пироэлектрик, но при этом в период действия нити накала активного изменения температуры пироэлектрика и индукции заряда на его поверхности не было, что свидетельствует о том, что источником электрического поля является заряд, накопленный на поверхности пироэлектрика в период предварительного нагрева. Более длительное облучение (более 15 секунд) поверхности пироэлектрика источником электронов не имеет смысла, так как весь накопленный положительный заряд компенсируется налетающими электронами.

Далее, при естественном охлаждении снова наблюдается генерация рентгеновского излучения при индукции заряда отрицательной полярности. Наблюдаются характеристические линии железа ( $K_{\alpha}$  6.40 кэВ) и хрома ( $K_{\alpha}$  5.41 кэВ), входящих в состав нержавеющей стали, а максимальная энергия достигает 20 кэВ. Но интенсивность излучения на порядки слабее, чем при дополнительном облучении пироэлектрика электронами.

Была проведена серия подобных измерений с несколькими значениями величины предварительного изменения температуры  $\Delta T$ . На рис. 3 представлена искомая зависимость максимальной энергии рентгеновского излучения, генерируемого при работе дополнительного источника электронов, от величины предварительного изменения температуры, которая варьировалась в диапазоне от 10 до 60 °C. Исследования с изменением температуры выше указанного предела были затруднены возможностями используемого элемента Пельтье, а также опасностью развития механических повреждений, обусловленных излишне интенсивным разогревом.

При относительно небольших величинах предварительного изменения температуры (порядка 10–40 °C) данная зависимость линейная, однако дальнейшее повышение этой величины приводит к постепенному насыщению максимальной энергии в области 80 кэВ. По всей видимости, это связано с увеличением доли заряда, которая теряется с полярной поверхности через окружающую среду, боковые поверхности и объем пироэлектрика при повышении количества заряда, индуцируемого на полярную поверхность пироэлектрика. Оценки максимальной энергии электронов при изменении температуры монокристалла танталата лития на 50 °C в однокристальной схеме показывают, что максимально достижимая энергия составляет приблизительно 100 кэВ [5, 13], что согласуется с полученными нами результатами. Разность оценки и экспериментально



Рис. 3: Зависимость максимальной энергии рентгеновского излучения, генерируемого при работе дополнительного источника электронов, от величины предварительного изменения температуры.

наблюдаемого значения максимальной энергии позволяет оценить долю теряемого заряда в 20% от общего количества индуцируемого заряда. Также стоит отметить, что изменение температуры на относительно небольшую величину (около 10 °C) позволяет наблюдать генерацию рентгеновского излучения с максимальной энергией около 40 кэВ. Изменение температуры еще на меньшую величину приводит к резкому ослаблению эффекта генерации рентгеновского излучения, что затрудняет корректное определение максимальной энергии спектра при малой величине предварительного изменения температуры.

Итак, применение импульсного режима генерации рентгеновского излучения с применением дополнительного эмиттера электронов позволяет получить верхнюю оценку максимальной энергии рентгеновского излучения при изменении температуры пироэлектрика на определенную величину. Меньшая энергия рентгеновского излучения будет свидетельствовать о наличии процессов, приводящих к повышенной утечке заряда с поверхности пироэлектрика или отсутствию баланса между положительным и отрицательным зарядом при термоциклировании. Отдельно стоит отметить, что проведенные измерения ясно показывают, что применение импульсного режима работы пироэлектрического источника позволяет получить максимальные характеристики генерируемого излучения, что позволяет рассчитывать, что именно такой режим работы позволит использовать пироэлектрические источники рентгеновского излучения в различных приложениях.

Работа выполнена при финансовой поддержке конкурсной части госзадания по созданию и развитию лабораторий, проект № FZWG-2020-0032 (2019-1569).

## ЛИТЕРАТУРА

- R. V. Grieken, A. Markowicz, Handbook of X-Ray Spectrometry (2nd ed.) (New York, 2002).
- [2] A. Gyrecka-Drzazga, JMEMS **26**(1), 295 (2017).
- [3] P. Russo, Handbook of X-ray Imaging (CRC Press, 2018).
- [4] J. D. Brownridge, Nature **358**, 287 (1992).
- [5] J. A. Geuther, Y. Danon, J. Appl. Phys. 97, 104916 (2005).
- [6] A. S. Kubankin, A. S. Chepurnov, O. O. Ivashchuk, et al., AIP Adv. 8, 035207 (2018).
- [7] A. V. Shchagin, V. S. Miroshnik, V. I. Volkov, et al., Appl. Phys. Lett. 107, 233505 (2015).
- [8] F. Bassani, Encyclopedia of Condensed Matter Physics (Academic Press, 2005).
- [9] J. D. Brownridge, Electron and positive ion beams and x-rays produced by heated and cooled pyroelectric crystals such as LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> in dilute gases: phenomenology and applications. Trends in Electro-Optics Research (Nova Science Publishers, 2005), P. 57-94.
- [10] V. I. Nagaychenko, V. M. Sanin, A. M. Yegorov, et al., Prob. of At. Sci. and Tech. 412(2), 214 (2004).
- [11] A. N. Oleinik, P. V. Karataev, A. A. Klenin, et al., Russ. Phys. J. 63, 119 (2020).
- [12] O. O. Ivashchuk, A. V. Shchagin, A. S. Kubankin, et al., JINST 15, C02002 (2020).
- [13] J. Geuther, Radiation generation with pyroelectric crystals. PhD Thesis (Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, New York, 2007).

Поступила в редакцию 14 октября 2020 г.

После доработки 10 марта 2021 г.

Принята к публикации 11 марта 2021 г.