

УДК 537.531

**НАБЛЮДЕНИЕ ПАРАМЕТРИЧЕСКОГО  
РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ  
ИЗ ВЫСОКООРИЕНТИРОВАННОГО  
ПИРОЛИТИЧЕСКОГО ГРАФИТА  
В ГЕОМЕТРИИ ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ**

И. А. Кищин<sup>1,2</sup>, Е. Ю. Киданова<sup>1</sup>, А. С. Кубанкин<sup>1,2</sup>,  
Р. М. Нажмудинов<sup>1,2,3</sup>, В. И. Алексеев<sup>2</sup>, А. Н. Елисеев<sup>2</sup>

*В работе представлены результаты эксперимента по генерации параметрического рентгеновского излучения при взаимодействии релятивистских электронов с высокоориентированным пиролитическим графитом. Измерения проводились под углом наблюдения  $180^\circ$  относительно скорости движения электронов. Впервые был зафиксирован спектр параметрического рентгеновского излучения, образованного в высокоориентированном пиролитическом графите в геометрии обратного рассеяния, и измерены зависимости выхода излучения от угла ориентации облучаемой мишени.*

**Ключевые слова:** параметрическое рентгеновское излучение, высокоориентированный пиролитический графит, релятивистские электроны, источник рентгеновского излучения.

*Введение.* Параметрическим рентгеновским излучением (ПРИ) называется когерентное излучение, образующееся в среде с упорядоченной структурой под действием пучков ускоренных заряженных частиц. Особый интерес представляет ПРИ релятивистских электронов, так как на основе данного типа излучения существует возможность создания интенсивного источника квазимонохроматического рентгеновского

<sup>1</sup> НИУ “Белгородский государственный национальный исследовательский университет”, Белгород, Россия; e-mail: ivan.kishin@mail.ru.

<sup>2</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53.

<sup>3</sup> Белгородский государственный технологический университет имени В. Г. Шухова, Белгород, Россия.

излучения с перестраиваемой энергией [1]. На протяжении нескольких лет в теоретических и экспериментальных исследованиях, посвященных изучению свойств ПРИ и возможностей его применения, в качестве мишеней рассматривались кристаллы [2], поликристаллы [3], метаматериалы [4], порошки [5, 6]. Была продемонстрирована возможность использования ПРИ для диагностики пучков заряженных частиц [7], исследования структуры биологических объектов [8], рентгеновской томографии [9], а также для исследования характеристик излучающих мишеней [10].

В настоящее время существует две станции, использующие ПРИ как основной механизм генерации рентгеновского излучения. Станция LEBRA-PXR [8] позволяет получать квазимонохроматическое излучение в диапазоне энергий от 4 до 33 кэВ при взаимодействии электронного пучка с энергией 100 МэВ с кремниевым кристаллом. Вторая подобная станция [4] позволяет генерировать излучение с энергией от 60 до 300 кэВ благодаря использованию в качестве мишеней структур Ван-дер-Ваальса.

Главным недостатком коммерческих источников на основе ПРИ является сравнительно малая интенсивность генерируемого излучения. Для решения данной проблемы рассматривалась перспектива использования в качестве материала для изготовления мишеней высокоориентированного пиролиитического графита (ВОПГ) [11–13]. Данный вид мишеней не имеет идеальной структуры, а является мозаичным кристаллом. Такого рода кристалл обеспечивает больший выход рентгеновского излучения по сравнению с совершенным кристаллом, что было продемонстрировано теоретически [14]. Порошковые мишени и поликристаллы не рассматриваются в качестве мишеней для источников ПРИ ввиду очень малого выхода излучения [15, 16].

В настоящей работе представлены результаты эксперимента, в котором впервые было зарегистрировано ПРИ релятивистских электронов, образованное в ВОПГ в геометрии обратного рассеяния. Измеренные спектры рентгеновского излучения содержат пики ПРИ высоких порядков, что наблюдалось и в ранее выполненных работах [17, 18]. В текущей работе определены энергия и ширина на полувысоте спектральных пиков ПРИ. Предложена новая методика измерений и описан эксперимент, в результате которого получены зависимости выхода ПРИ от угла ориентации мишени.

*Экспериментальная установка.* Измерения были выполнены на экспериментальной установке “Рентген 1” [19] Физического института им. П. Н. Лебедева РАН (ФИАН). В качестве источника релятивистских электронов использовался микротрон с энергией пучка 7 МэВ, частотой сброса пучка 50 Гц и длительностью сброса до 4 мкс.

В качестве мишени использовался ВОПГ с мозаичностью  $0.4^\circ \pm 0.1^\circ$  и размерами  $10 \times 10 \times 1$  мм<sup>3</sup>. Мишень крепилась на рамку из оргстекла (2) (см. рис. 1), которая устанавливалась на гониометр (1) с возможностью производить вращение мишени вокруг вертикальной и горизонтальной осей с точностью  $\pm 0.01^\circ$ , что было достаточно для проведения измерений.

Гониометр был установлен в вакуумной камере, рабочее давление в которой во время проведения эксперимента составляло  $10^{-5}$  Торр. Интенсивность пучка измерялась с помощью цилиндра Фарадея (3) и наноамперметра, измеренный средний ток находился в диапазоне 1–10 нА. Положение, размер и форма пучка определялась с помощью газонаполненной пропорциональной камеры. Размер пучка составлял 3 мм с начальной расходимостью 15 мрад.

Измерения спектров ПРИ проводились под углом наблюдения  $\theta = 180^\circ$ , то есть в такой геометрии, когда измеряемое излучение распространяется в противоположную сторону относительно вектора скорости падающих электронов (см. рис. 2). Угол  $\varphi$  соответствует углу ориентации мишени.

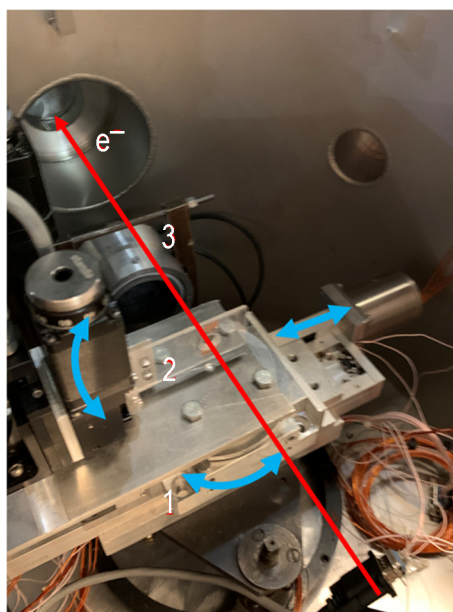


Рис. 1: Фотография установленных элементов внутри мишенной камеры: 1 – гониометр, 2 – рамка для крепления мишени, 3 – цилиндр Фарадея в убранном положении.

Для измерения спектров излучения использовался рентгеновский спектрометр Amptek X-123SDD [18]. Калибровка спектрометра и определение его энергетического разрешения в условиях эксперимента осуществлялись по измеренным спектрам харак-

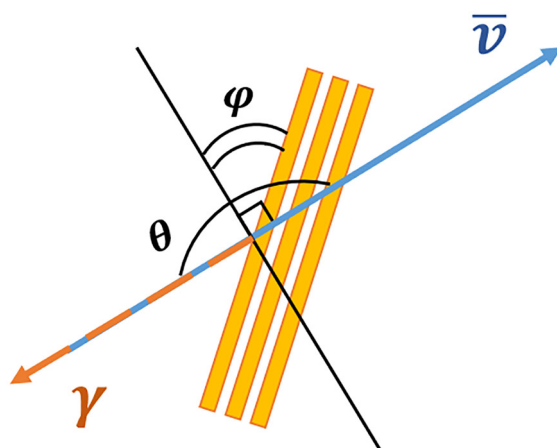


Рис. 2: Геометрия эксперимента.  $\theta$  – угол наблюдения,  $\varphi$  – угол ориентации мишени.

теристического рентгеновского излучения (ХРИ) кремния ( $K_\alpha = 1.740$  кэВ), титана ( $K_\alpha = 4.510$  кэВ), никеля ( $K_\alpha = 7.478$  кэВ) и платины ( $L_\alpha = 9.442$  кэВ) при времени формирования 1 мкс. Образцы для калибровки устанавливались вместо мишени. Энергетическое разрешение спектрометра составило 98–177 эВ в диапазоне энергий 1–10 кэВ. Эффективность регистрации излучения в области энергий от 1.5 до 10 кэВ находится в пределах 70–100% (см. рис. 3).

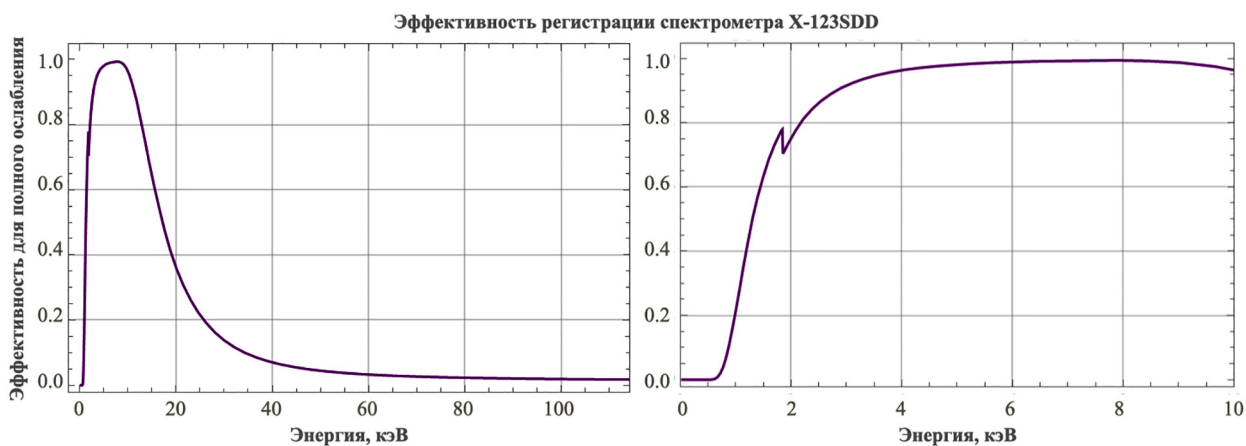


Рис. 3: Эффективность регистрации излучения спектрометром X-123SDD, данные для построения графика взяты с сайта производителя [20]. Слева – график для всего спектрального диапазона энергий. Справа – для интересующей области энергий.

Спектрометр был огражден свинцовой защитой и жестко коллимировался вольфрамовым коллиматором с апертурой 1 мм и свинцовым коллиматором с апертурой

5 мм таким образом, чтобы детектор “видел” только мишень. Телесный угол составлял  $3.22 \times 10^{-7}$  ср. Время формирования сигнала во всех экспериментах составляло 1 мкс.

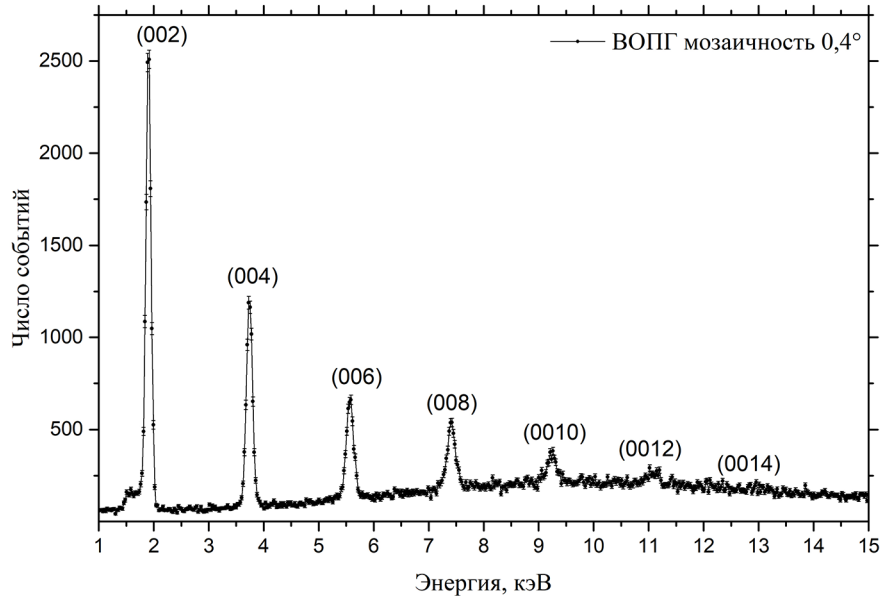


Рис. 4: Первичный спектр ПРИ из ВОПГ с мозаичностью  $0.4^\circ$ .

*Измерения.* Первые эксперименты выявили присутствие на спектрах шести порядков дифракции от кристаллографических плоскостей семейства  $(00N)$ , где  $N = 2, 4, 6, \dots$ . На рис. 4 представлен измеренный во время эксперимента спектр ПРИ из ВОПГ.

Измеренные и рассчитанные по формуле Брэгга положения пиков ПРИ приведены в табл. 1. Расчетные значения были вычислены при следующих условиях: угол наблюдения  $\theta = 180^\circ$ , кристаллическая решетка – гексагональная структура (альфа-графит) с параметрами  $a = 1.418 \text{ \AA}$  и  $c = 6.71 \text{ \AA}$ . Как видно по рис. 4 и табл. 1, наблюдается хорошее соответствие пиков в спектре по положению для всех кристаллографических плоскостей.

Измеренные пики ПРИ в процессе обработки экспериментальных данных были аппроксимированы функцией Гаусса, после чего были рассчитаны спектральные ширины на полувысоте. Результаты вычислений приведены в табл. 2. Видно, что ширина на полувысоте пиков ПРИ сопоставима с энергетическим разрешением детектора в рассматриваемой спектральной области, незначительное превышение наблюдается для третьего и четвертого порядка, что связано с малой статистикой набора экспериментальных данных. Для более высоких порядков дифракции ширины на полувысоте не вычис-

лялись ввиду недостаточного набора статистики. На основе представленных данных можно сказать, что уширение спектральной линии за счет мозаичности не наблюдалось. В то же время в работе [21] из двух наиболее подходящих мишеней ВОПГ и LiF для достижения оптимального выхода излучения был выбран LiF, поскольку у ВОПГ наблюдается уширение линий ПРИ. Возможно, что различие в полученных результатах связано с выбранной геометрией наблюдения. Известно, что в геометрии обратного рассеяния спектральная ширина минимальна [22, 23].

Т а б л и ц а 1

*Расчетные и экспериментальные положения пиков ПРИ из ВОПГ*

Кристаллографическая плоскость	Расчетные значения ПРИ, кэВ	Экспериментальные значения ПРИ, кэВ
(002)	1.859	$1.869 \pm 0.001$
(004)	3.718	$3.720 \pm 0.002$
(006)	5.576	$5.564 \pm 0.003$
(008)	7.435	$7.409 \pm 0.008$
(00 10)	9.294	$9.266 \pm 0.007$
(00 12)	11.153	$11.106 \pm 0.012$
(00 14)	13.012	$12.979 \pm 0.039$

Т а б л и ц а 2

*Спектральные ширины пиков ПРИ на полувысоте (FWHM)*

Плоскость	Энергия, эВ	
	Ширина на полувысоте	Энергетическое разрешение спектрометра
(002)	$111 \pm 0.7$	$109 \pm 1$
(004)	$127 \pm 1.7$	$127 \pm 2$
(006)	$159 \pm 4.2$	$144 \pm 6$
(008)	$183 \pm 7.0$	$159 \pm 10$

Однако в процессе эксперимента при попытках получить зависимость выхода ПРИ от угла ориентации мишени, подобную «кривой качания» в рентгеновской спектроскопии, возникла проблема: интенсивность пучка колебалась в пределах от 1 до 10 нА. Для решения данной проблемы в некоторых экспериментах с кристаллами и поликристаллами используют нормировку на интенсивность ХРИ мишени, пропорциональную току

пучка. В эксперименте использовался спектрометр X-123SDD с входным бериллиевым окном толщиной 12.5 мкм, которое не позволяет наблюдать излучение с энергией менее 677 эВ. Так как характеристическая  $K_\alpha$  линия углерода имеет энергию 277 эВ, которая лежит ниже возможной энергии регистрации для используемого спектрометра, то нормировка результатов на ХРИ углерода не представляется возможной.

Согласно расчету положения спектральных пиков ПРИ из ВОПГ оптимальным случаем является нормировка на ХРИ меди, характеристические линии которой лежат вблизи энергий  $K_\alpha = 8.048$  КэВ и  $K_\beta = 8.905$  КэВ. Преимущество использования меди в данном эксперименте также заключается в том, что в ВОПГ толщиной 1 мм происходит полное поглощение  $L_\alpha = 0.93$  кэВ и частичное поглощение  $K_\alpha$  меди, что позволяет не перегружать используемый во время эксперимента детектор.

Для нормировки медная фольга толщиной 40 мкм закреплялась вплотную на выходную для пучка электронов поверхность мишени ВОПГ. Нормировка проходила на основе измерения интенсивности  $K_\alpha$  линии меди. На рис. 5 представлен спектр ПРИ, образующийся в ВОПГ с мозаичностью  $0.4^\circ$  после установки медной фольги. На спектре отчетливо видны рефлексы ПРИ от плоскостей (002), (004), (006), (008), также на спектре присутствуют пики характеристических  $K_\alpha$  и  $K_\beta$  линий меди. Стоит отметить, что выход ХРИ меди и выход ПРИ из ВОПГ соизмеримы, в то время как, например, в экспериментальных работах [24, 16] было показано, что выход ПРИ из поликристаллов на несколько порядков меньше выхода ХРИ из мишени.

После установки медной фольги были проведены измерения ориентационных зависимостей выхода ПРИ в горизонтальной плоскости. Полученные результаты представлены в виде тепловой карты на рис. 6. Наблюдается двугорбое угловое распределение с провалом при угле ориентации мишени  $\varphi = 0^\circ$ , типичное для ПРИ, образующегося в кристаллических мишенях. Максимумы выхода излучения наблюдаются при угле  $\varphi_{\max} = \pm 2^\circ$ . Угол максимума выхода ПРИ можно определить по следующей формуле:

$$\varphi_{\max} = \frac{1}{2\gamma_{\text{eff}}} = \frac{\sqrt{\gamma^{-2} + \frac{\omega_0^2}{\omega^2}}}{2},$$

где  $\gamma$  – Лоренц-фактор электрона,  $\omega_0$  – плазменная частота,  $\omega$  – энергия излучения. Наличие двойки в знаменателе приведённой формулы связано с используемой в эксперименте геометрии измерений, в которой поворот кристалла на угол  $\varphi$  вызывает отклонение пучка ПРИ в пространстве на угол  $2\varphi$ . В связи с этим измеряемая угловая зависимость выхода излучения получается “сжатой” относительно угловых координат.

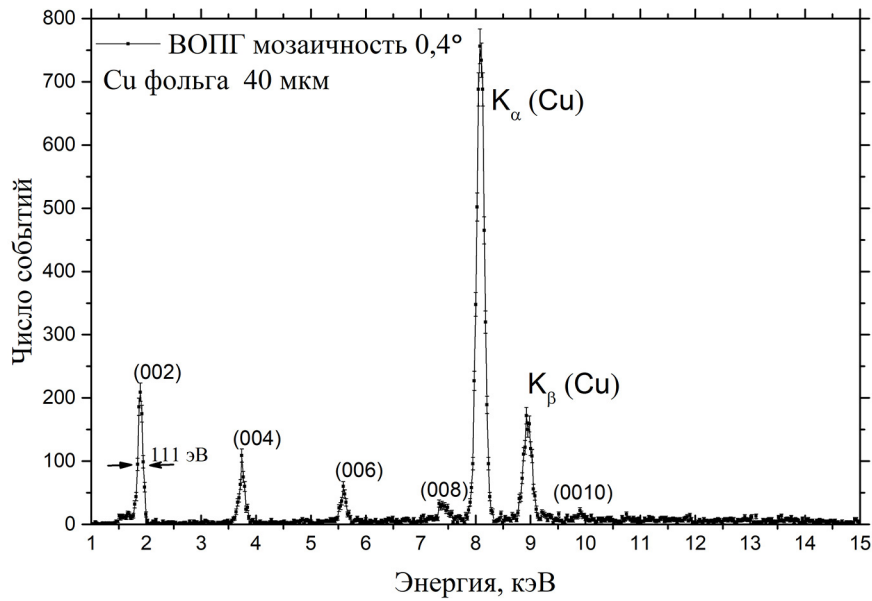


Рис. 5: Спектр ПРИ из ВОИГ с мозаичностью  $0,4^\circ$  после установки медной мишени.

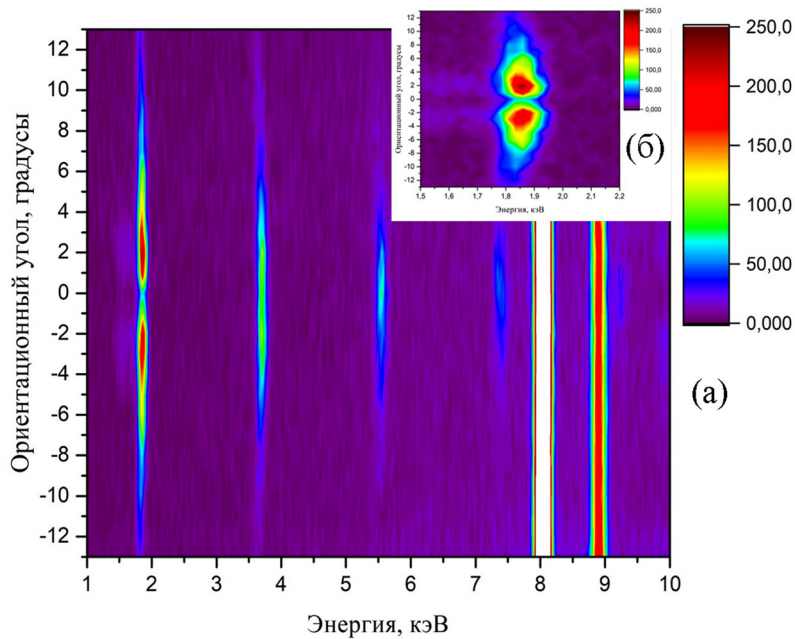


Рис. 6: Зависимости интенсивности выхода ПРИ от угла ориентации мишени  $\varphi$ : (а) энергетическая область от 1 до 10 кэВ, (б) энергетическая область от 1.5 до 2.2 кэВ.

Как видно из рис. 6, провал наблюдается явно для первого порядка дифракции и незначительно для второго, для остальных порядков наблюдается сужение ориентаци-



онных зависимостей. Видно, что провал в  $0^\circ$  “замывается”, данное явление связано с многократным рассеянием электронов в рассматриваемой мишени.

*Заключение.* Проведены экспериментальные исследования ПРИ, образующегося при взаимодействии пучка электронов с энергией 7 МэВ с высокоориентированным пиро-литическим графитом:

– Удалось достоверно зафиксировать шесть рефлексов ПРИ от плоскости (002) для угла наблюдения  $180^\circ$  и энергии электронов 7 МэВ.

– Было установлено, что ширины на полувывоте наблюдаемых рефлексов ПРИ не превышают энергетического разрешения детектора для первого и второго порядка дифракции в наблюдаемой области спектра.

– Измеренные ориентационные зависимости выхода ПРИ от угла ориентации мишени показали типичное двугорбое угловое распределение для кристаллических мишеней только для первого порядка дифракции от плоскости (002).

Работа выполнена при финансовой поддержке конкурсной части государственного задания по созданию и развитию лабораторий, проект № FZWG-2020–0032 (2019–1569) и при поддержке гранта Президента РФ для молодых ученых-кандидатов наук МК-1320.2022.1.2

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] J. Hyun, M. Satoh, M. Yoshida, et al., Phys. Rev. Accel. Beams **21**, 014701 (2018). DOI: 10.1103/PhysRevAccelBeams.21.014701.
- [2] V. G. Baryshevsky, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B **355**, 17 (2015). DOI: 10.1016/j.nimb.2015.04.004.
- [3] S. Blazhevich, A. Chepurnov, V. Grishin, et al., Phys. Lett. A **254**, 230 (1999). DOI: 10.1016/S0375-9601(99)00056-0.
- [4] Michael Shentcis, Adam K. Budniak, Xihang Shi, et al., Nature Photonics **14**, 686 (2020). DOI: 10.1038/s41566-020-0689-7.
- [5] V. I. Alekseev, A. N. Eliseyev, E. Irribarra, et al., Phys. Lett. A **383**, 770 (2019). DOI: 10.1016/j.physleta.2018.11.044.
- [6] В. И. Алексеев, А. Н. Елисеев, И. А. Кищин, и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **48**(2), 9 (2021). DOI: 10.3103/s1068335621020056.
- [7] O. D. Skoromnik, I. D. Feranchuk, D. V. Lu, Nucl. Instrum. Meth. B **444**, 125 (2019). DOI: 10.1016/j.nimb.2019.01.003.

- [8] Y. Hayakawa, Y. Takahashi, T. Kuwada, et al., *J. Instrum.* **8**, C08001 (2013). DOI: 10.1088/1748-0221/8/08/C08001.
- [9] Y. Hayakawa, K. Hayakawa, K. Nogami, et al., *Phys. Rev. Accel. Beams* **22**, 024701 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevAccelBeams.22.024701.
- [10] N. Nasonov, P. Zhukova, V. Sergienko, *J. Phys. Conf.* **236**, 012017 (2010). DOI: 10.1088/1742-6596/236/1/012017.
- [11] E. A. Bogomazova, B. N. Kalinin, G. A. Naumenko, et al., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **201**, 276 (2002). DOI: 10.1016/S0168-583X(02)01435-0.
- [12] И. Е. Внуков, Ю. В. Жандармов, Р. А. Шатохин, *Вестник ХНУ им. В. Н. Каразина* **808**, 25 (2008) (in Russian).
- [13] Д. А. Бакланов, А. Н. Балдин, И. Е. Внуков и др., *Вестник ХНУ им. В. Н. Каразина* **763**, 41 (2007) [in Russian].
- [14] P. Rullhusen, *Nucl. Instr. and Meth. B* **145**, 163 (1998). DOI: 10.1016/S0168-583X(98)00241-9.
- [15] И. А. Кищин, Е. Ю. Киданова, А. С. Кубанкин и др., *Краткие сообщения по физике ФИАН* **49**(12), 401 (2021). DOI: 10.3103/S106833562212003X.
- [16] V. I. Alekseev, A. N. Eliseev, E. F. Irribarra, et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **342**, 47 (2015). DOI: 10.1016/j.nimb.2014.09.009.
- [17] R. B. Fiorito, D. W. Rule, X. K. Maruyama, et al., *Physical Review Letters* **71**, 704 (1993). DOI: 10.1103/PhysRevLett.71.704.
- [18] К. Ю. Амосов, М. Ю. Андреяшкин, В. А. Верзилов и др., *Письма в ЖЭТФ* **60**, 506 (1994).
- [19] V. I. Alexeyev, V. A. Astapenko, A. N. Eliseyev, et al., *Journal of Surface Investigation* **11**(4), 694 (2017). DOI: 10.1134/S1027451017040036.
- [20] Amptek, FAST SDD Ultra High-Performance Silicon Drift Detector. URL: <https://www.amptek.com/products/x-ray-detectors/fast-sdd-x-ray-detectors-for-xrf-eds/fast-sdd-silicon-drift-detector>.
- [21] B. Sones, Y. Danon, R. C. Block, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, Beam Interact. Mater. Atoms* **227**, 22 (2005). DOI: 10.1016/j.nimb.2004.05.008.
- [22] V. Astapenko, N. Nasonov, P. Zhukova, *J. Phys. B, At. Mol. Opt. Phys.* **40**, 1337 (2007). DOI: 10.1088/0953-4075/40/7/003.
- [23] V. I. Alekseev, A. N. Eliseyev, E. Irribarra, et al., *Phys. Lett. A* **382**, 503 (2018). DOI: 10.1016/j.physleta.2017.12.038.

- [24] V. I. Alekseev, A. N. Eliseyev, E. Irribarra, et al., *Radiation Physics and Chemistry* **202**, 110497 (2023). DOI: 10.1016/j.radphyschem.2022.110497.

Поступила в редакцию 19 сентября 2023 г.

После доработки 28 сентября 2023 г.

Принята к публикации 29 сентября 2023 г.