

Оптимизация параметров компактного источника мягкого рентгеновского излучения для работы в диапазоне длин волн 2–5 nm

© А.А. Самохвалов,^{1,2} К.А. Сергушичев,² С.И. Елисеев,^{2,3} Т.П. Бронзов,² Е.П. Большаков,²
Д.В. Гетман,² А.А. Смирнов,²

¹ Университет ИТМО,

197101 Санкт-Петербург, Россия

² ООО „Лаборатория им. В.А. Бурцева“,

197022 Санкт-Петербург, Россия

³ Санкт-Петербургский государственный университет,

199034 Санкт-Петербург, Россия

e-mail: samokhvalov.itmo@gmail.com

Поступило в Редакцию 4 апреля 2022 г.

В окончательной редакции 4 апреля 2022 г.

Принято к публикации 4 апреля 2022 г.

Представлен компактный источник мягкого рентгеновского излучения для работы в диапазоне длин волн 2–5 nm с частотой следования импульсов более 500 Hz. Проведена оптимизация параметров источника для уменьшения интенсивности абляции стенки разрядного объема и получения максимальной интенсивности спектральных линий многозарядных ионов C V — 4 nm и Ag IX — 4.87 nm. Полученные результаты могут быть использованы при разработке микроскопа для задач клеточной микроскопии на просвет с нанометровым разрешением.

Ключевые слова: наносекундный капиллярный разряд, плазма, мягкое рентгеновское излучение, многозарядные ионы.

DOI: 10.21883/JTF.2022.08.52786.73-22

Введение

Микроскопия в области прозрачности воды („водяном окне“), т.е. в диапазоне длин волн 2.3–4.4 nm, является уникальным методом исследования живых и подготовленных клеточных культур и различных нано- и биообъектов. Этот метод позволяет получать важную информацию о внутренней структуре клеток (органеллах) с высоким латеральным разрешением, достигающим ~ 10 nm [1]. Область 4.5–5 nm является областью прозрачности углерода, так называемым „углеродным окном“ [2], в данном диапазоне азот- и кислородсодержащие соединения имеют сильное поглощение. Применяя эти два диапазона длин волн, появляется возможность детальной диагностики (томографии) внутренней структуры биообъектов в режиме на просвет за счет получения контрастных снимков и их последующей сшивки.

Получить излучение в указанном диапазоне длин волн можно на синхротроне, но работа на установках такого уровня не доступна для широкого круга исследователей. Кроме того, использование синхротрона для решения рутинных биомедицинских задач является, очевидно, необоснованным. Поэтому в настоящее время активно разрабатываются компактные настольные источники мягкого рентгеновского излучения (МРИ) для последующей реализации на их базе микроскопа с помощью дифракционной и многослойной рентгеновской оптики.

В настоящей работе проводится исследование и оптимизация параметров компактного источника излучения

на основе наносекундного капиллярного разряда для его работы в области диапазонов длин волн 2.3–4.4 и 4.5–5 nm.

1. Экспериментальная установка

Конструкция разрядной полости источника мягкого рентгеновского излучения на основе капиллярного разряда представлена на рис. 1.

Возбуждение разряда происходило в объеме боросиликатного капилляра, длина которого составляла 20 mm, внутренний и внешний диаметры 1.5 и 8 mm соответственно. При выборе параметров капилляра мы основывались на собственных предварительных экспериментах и результатах авторов работы [3]. Известно, что применение капилляров с большим внутренним диаметром приводит к резкому падению плотности тока и, как следствие, существенному уменьшению интенсивности линий ионов в области „водяного окна“. Использование капилляров с диаметров меньшим, чем 1.5 mm — к сильной абляции стенки. Диаметры отверстий в катоде и аноде составляли 0.8 и 1.6 mm соответственно, газ непрерывно натекал со стороны катода через игольчатый натекаль. Давление газа на входе в капилляр составляло ~ 1 –4 Torr, на выходе $\sim 10^{-3}$ Torr в зависимости от вида газа. Откачка всей системы осуществлялась турбомолекулярным насосом. Таким образом, в капилляре формировался градиент давления газа (рис. 1, а), что давало условия для образования катодной плазмы —

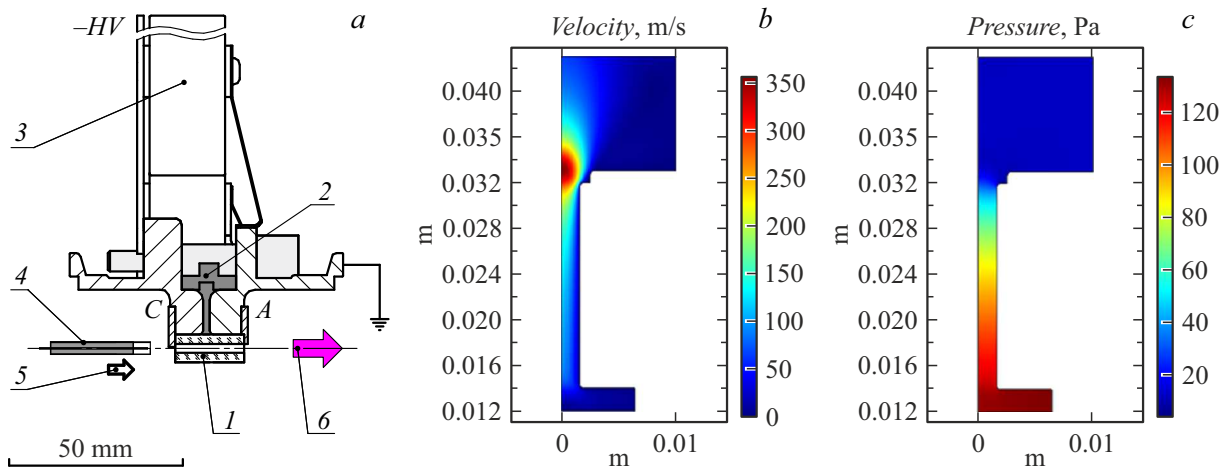


Рис. 1. Конструкция капиллярного узла (а): 1 — боросиликатный капилляр, 2 — изолятор, 3 — керамический конденсатор, 4 — инжектор плазмы, 5 — направление потока газа, 6 — импульс МРИ; С, А — катод и анод соответственно; расчетные распределения скорости (b) и давления газа в капилляре (c).

эффект „полого катода“ [4], стабильности самого процесса пробоя и уменьшения поглощения излучения в остаточном газе.

В качестве изолятора между катодом и анодом мы использовали полиамидную втулку и вакуумную резину, конструкция обжималась пластиковыми винтами, что обеспечивало герметичность системы. Мы отказались от использования жидкого диэлектрика в качестве накопителя энергии и изолятора, так как это приводит к деградации внешней стенки капилляра и попаданию воды в вакуумную систему, что было показано в работе [3]. В качестве накопителей на капиллярном узле были установлены керамические конденсаторы общей емкостью 8 nF.

Известно, что основной проблемой газоразрядных источников является „загрязнение“ спектра спектральными линиями элементов, из которых сделан капилляр. Другая проблема — загрязнение оптической системы продуктами абляции — является частично решенной, например, путем установки тонкопленочного фильтра для МРИ в вакуумной системе на пути пучка или системы улавливания частиц.

Тем не менее минимизировать интенсивность процесса абляции стенки и, соответственно, „загрязнение“ спектра можно несколькими путями: 1) выбором материала капилляра такого, чтобы элементы, из которых сделан капилляр, не имели спектральных линий в нужном диапазоне излучения (или не возбуждались в плазме), 2) высокой скоростью ввода энергии в плазму, которая обеспечивается малой индуктивностью разрядного контура и соответствующим увеличением скорости роста тока. С другой стороны, чтобы уменьшить тепловую нагрузку на капилляр и эрозию катода мы разработали высоковольтный генератор, обеспечивающий быструю зарядку блока конденсаторов за время ~ 100 ns, что на порядок меньше, чем у известных из литературы газоразрядных компактных источников МРИ [5].

В работе [6] использовался капилляр из керамики Al_2O_3 и было показано, что даже при вводимой энергии 1 J в плазму в районе 4–6 nm возникают линии ионов Al VIII, IX, которые сложно отфильтровать с помощью металлических фильтров. Поэтому в настоящей работе использовался капилляр из боросиликатного стекла, так как данный материал термостоек, а ионы кремния в этом диапазоне трудно возбуждаемы. Также существенно, что качество внутренней поверхности стекла намного выше, чем у керамики Al_2O_3 .

1.1. Высоковольтный генератор источника МРИ

Для увеличения скорости ввода энергии в плазму был разработан импульсный высоковольтный генератор на базе современного тиратрона ТПИ-10к/50. Особенностью генератора является возможность получения наносекундных импульсов напряжения амплитудой до 35 kV, поэтому энергия, вкладываемая в плазму, составляла ~ 5 J. Электрическая схема показана на рис. 2.

Основная идея схемы высоковольтного генератора состоит в том, чтобы заряжать накопитель генератора тока капиллярного разряда (C2) за один колебательный цикл при использовании промежуточного емкостного накопителя с той же энергетикой, но при более низком исходном напряжении, примерно равном удвоенному выпрямленному напряжению трехфазной сети. Центральным узлом данной системы заряда является импульсный трансформатор (T1), выполненный на ферритовом сердечнике из материала N87, во вторичной и первичной цепи которого используются емкости C1 и C2.

Питание схемы осуществляется от трехфазной сети переменного тока 380 V/50 Hz через защитный автомат. Трехфазный мостовой выпрямитель VB1 обеспечивает заряд емкости фильтра C0 на электролитических конденсаторах до напряжения $U_d = \sqrt{2}U_l \approx 530$ V (U_d — напряжение зарядки конденсаторов, U_l — напряжение

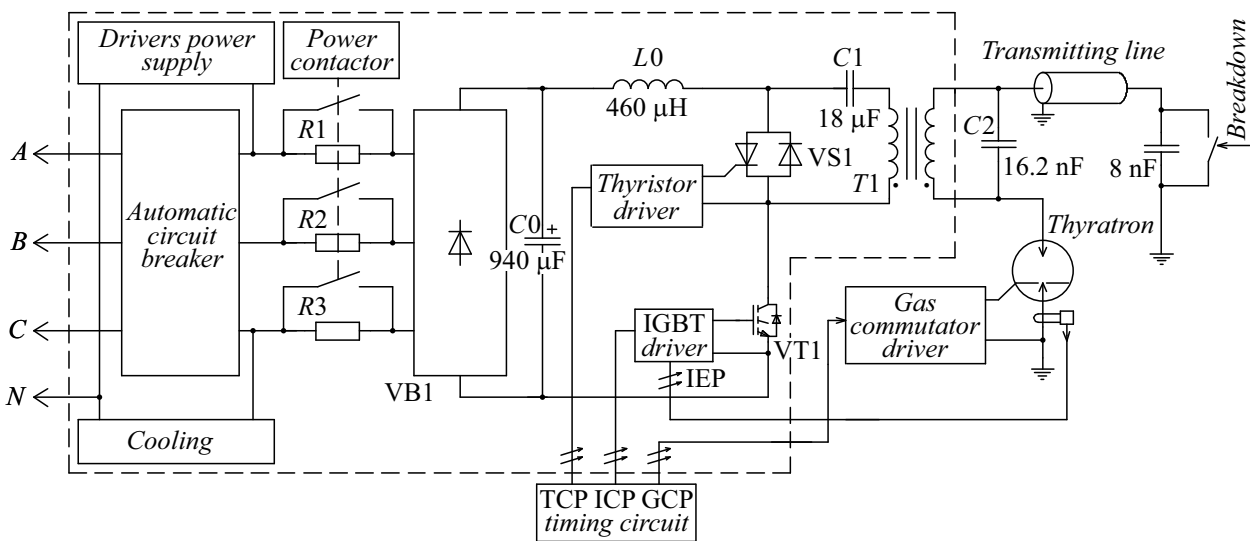


Рис. 2. Электрическая схема высоковольтного генератора источника МРИ.

питания сети). Для ограничения броска тока через выпрямитель в момент включения используются демпфирующие резисторы $R1$ – $R3$, далее шунтируемые контактором.

Заряд промежуточного накопителя $C1$ происходит по принципу резонансной перезарядки емкости фильтра $C0$ на много меньшую емкость $C1$ при открытии по внешней команде управляющего сигнала ICP транзистора $VT1$ на период времени $T/2 \sim 0.5\pi((L0 + L1)C1/(1 + C1/C0))$, где $L0$ — индуктивность зарядного дросселя и $L1$ — индуктивность первичной обмотки трансформатора $T1$. Ток заряда проходит по цепи: дроссель $L0$, промежуточный накопитель $C1$, первичная обмотка трансформатора $T1$, $VT1$. По истечении времени $T/2$ заканчивается первый полупериод зарядного тока, емкость $C1$ будет заряжена до напряжения ~ 1000 V.

Затем в момент времени $T/2$ производится запуск тиристора $VS1$ внешним сигналом TCP . Время передачи энергии из емкости $C1$ в накопительную емкость генератора $C2$ определяется коэффициентом связи обмоток импульсного трансформатора $T1$, который составляет ≈ 0.995 . Это приводит к хорошей передаче энергии в этом узле. Время заряда емкости $C2$ до максимального напряжения ~ 32 kV составляло ~ 5.7 μ s.

Далее тиратрон должен включаться с задержкой T_z относительно запуска тиристора с учетом задержки сигналов в драйверах каналов. После разряда накопительной емкости $C2$ на комплексную (активно-реактивную) нагрузку (разрядный промежуток) выдерживается интервал времени, в течение которого затухает ток в контуре тиристора и происходит подзарядка емкости фильтра $C0$ выпрямителем до номинального действующего напряжения U_d (интервал времени не менее интервала разряда $C0$, т.е. $T/2$). Последовательность трех пусковых сигналов драйверов формируется во

времязадающем модуле, который запускается внешним источником сигнала с требуемой периодичностью.

Во избежание аварий, вызванных сбоями зарядных процессов, введен датчик срабатывания тиратрона, разрешающий работу первой ступени при обнаружении в цепи газового коммутатора тока, превышающего уставку (сигнал IEP).

2. Экспериментальные результаты

В нашей установке в качестве рабочих газов были взяты смесь аргона с гелием (2 : 1) и углекислый газ, так как ионы аргона излучают одиночные спектральные линии в области „углеродного окна“, а ионы углерода в „водяном окне“. В работе [3] было показано, что добавка гелия в аргон увеличивает ресурс керамического капилляра, поэтому мы воспользовались этими данными для наших условий. О разряде в похожих условиях для CO_2 данных в литературе найдено не было, поэтому в наших исследованиях мы взяли чистый CO_2 .

Для диагностики излучения в наших экспериментах использовался кремниевый фотодиод ФДУК-1 (ЗАО „Техноэксан“) с размером активной области 1 mm², что давало возможность регистрировать временной профиль импульса излучения с разрешением не хуже ~ 1 ns, темновой ток фотодиода не превышал 100 nA. Чувствительность фотодиода в области длин волн 2 – 10 nm составляла 0.26 A/W. Перед фотодиодом были установлены два свободностоящих тонкопленочных фильтра — первый Al, второй представлял собой композицию Ti–C; толщины фильтров составляли ~ 200 nm [7]. Для отклонения пучка электронов за анодом капиллярного узла был установлен постоянный магнит. Фильтры ослабляли видимое излучение в 10^6 раз, а их комбинация давала выделить нужный диапазон излучения от 2.5 до 5 nm.

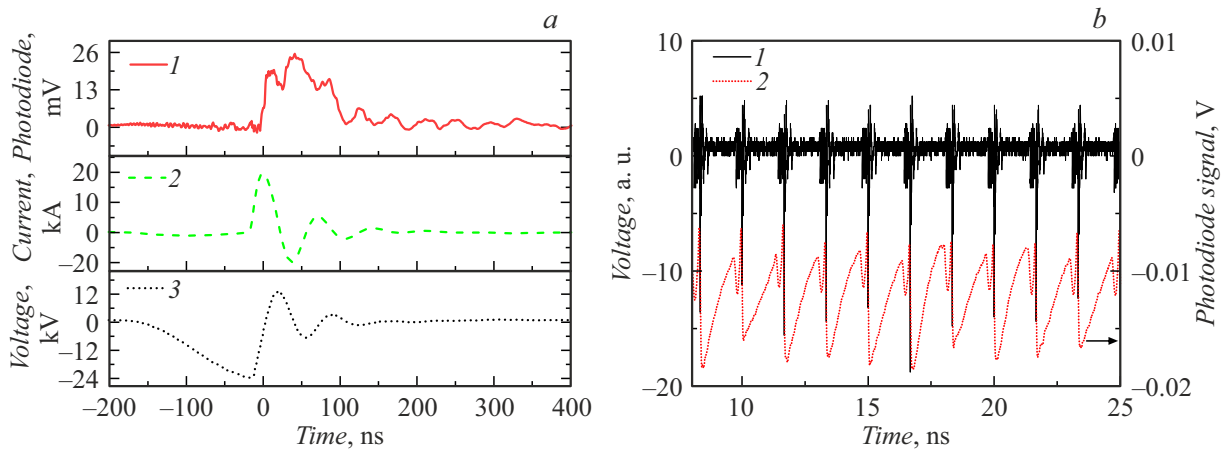


Рис. 3. *a* — осциллограммы импульса излучения через два фильтра (Ti–C, Al) (1), тока (2) и напряжения (3) при пробое в Ar:He (давление на входе в катод составляло 4.5 Torr); *b* — осциллограмма работы источника на частоте 600 Hz: 1 — импульс напряжения, 2 — сигнал с фотодиода через металлические фильтры.

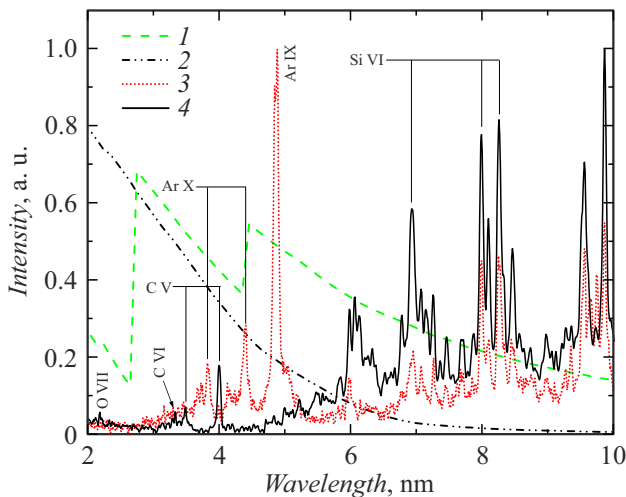


Рис. 4. Спектры пропускания тонкопленочных металлических фильтров: 1 — Ti–C, 2 — Al, спектры излучения капиллярной плазмы при пробое в: 3 — Ar:He (давление на входе в катод 1.5 Torr), 4 — CO₂ газе (давление на входе в катод 0.7 Torr).

Регистрация спектров капиллярной плазмы осуществлялась с помощью спектрометра скользящего падения GIS с дифракционной решеткой 1200 nm^{-1} [8], в качестве детектора использовалась ПЗС-камера с обратной засветкой (BICCD) GreatEyes GE 1024 1024 BI UV1, спектральное разрешение спектрометра $\lambda/\Delta\lambda$ составляло ~ 200 .

Импульс тока регистрировался петлей Роговского, установленной над капилляром у изолятора, разделяющего вакуумные фланцы, для измерения импульса напряжения использовался высоковольтный делитель. Все сигналы записывались четырехканальным осциллографом Tektronix DPO-7104C на полосе пропускания 1 GHz и усреднялись по 20 выстрелам. Отметим, что все сигналы передавались по радиочастотным кабелям

серии Sukoform (производитель Huber+Suhner), имеющим внешний металлический экран, что позволяло избежать наводок от высоковольтного генератора. С другой стороны сам генератор был помещен в специально разработанный и изготовленный металлический корпус. Как свидетельствуют экспериментальные данные, представленные ниже, эти факторы позволили устранить высокочастотные наводки, все сигналы в настоящей работе представлены без какой-либо обработки, уровень наводок по сигналу с фотодиода не превышал 1 mV. На рис. 3 представлены характерные осциллограммы напряжения, тока и импульса излучения через два фильтра (Ti–C и Al) при пробое в Ar:He, а также осциллограмма работы источника на частоте 600 Hz.

Как видно из рис. 3, амплитуда тока достигает 19 kA при длительности переднего фронта $\sim 10 \text{ ns}$, скорость нарастания фронта составила $\sim 2 \cdot 10^{12} \text{ A/s}$. При таких коротких импульсах тока происходит эффективная ионизация рабочего газа, и нагрев стенок капилляра становится минимальным. Вместе с тем величина амплитуды тока позволяет достигать температуры плазмы, достаточной для возбуждения переходов, спектральные линии которых лежат в области 2–5 nm. Появление импульса излучения с фотодиода через два фильтра наблюдалось после максимума импульса тока, и его длительность составляла около 100 ns. Таким образом, генерация МРИ происходит на стадии рекомбинации капиллярной плазмы. Аналогичные временные формы имели осциллограммы при пробое в CO₂ газе.

Для детального анализа излучения и процессов абляции стенки капилляра мы исследовали зависимость интенсивности эмиссионного спектра плазмы и его состав от давления на входе в капилляр для обоих газов. На рис. 4 представлены нормированные на максимум эмиссионные спектры капиллярной плазмы при разряде в Ar:He и CO₂ газе для давлений на входе в катод, при которых в плазме возникали ионы наибольшей

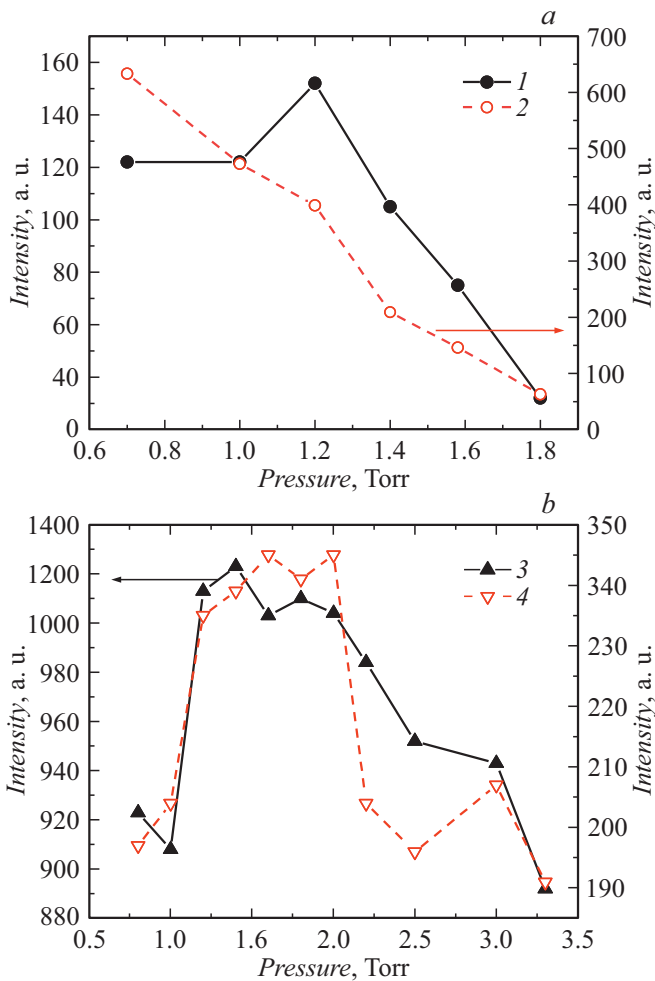


Рис. 5. Зависимости интенсивности свечения линий многозарядных ионов от рабочего давления при пробое в CO₂ газе (а): 1 — CV 4.02 nm, 2 — Si VI 6.92 nm; при пробое в смеси Ar:He (б): 3 — Ar IX, 4 — Si VI.

кратности, наиболее интенсивные линии были идентифицированы с помощью базы данных NIST [9]. Также на рис. 4 показаны спектры пропускания тонкопленочных металлических фильтров, использованных в измерениях с помощью фотодиода.

Как видно из рис. 4, в спектре присутствуют высоковозбужденные ионы в диапазоне длин волн 2–10 nm. В случае смеси аргон–гелий наиболее интенсивной является линия Ne-подобного Ar IX 2p6 – 2p5.3s на длине волны 4.87 nm, лежащая в области „углеродного окна“, также в спектре возникали линии ионов Ar X 2p5 – 2p4.(3P).3d, 2p5 – 2p4.(3P).3s, лежащие в области „водяного окна“. Эти линии наблюдались во всем диапазоне рабочих давлений газа на входе в катод от 0.7 до 4.5 Torr.

При разряде в CO₂ наблюдалась достаточно интенсивная линия Ne-подобного иона CV 1s2 – 1s2p (с длиной волны 4.02 nm), лежащая в области „водяного окна“, при данном давлении газа также наблюдался H-подобный

ион CVI 1s – 2p (длина волны 3.37 nm) и He-подобный ион кислорода OVII 1s² – 1s2p (длина волны 2.16 nm) лежащий вне области „водяного окна“. Отметим, что при давлениях газа более 1 Torr линии ионов CVI, OVII в спектре не наблюдались, а интенсивность линии CV 4.02 nm снижалась.

В спектрах были идентифицированы линии ионов кремния Si VI переходы 2s²2p⁵ – 2s²2p⁴(¹D)4d, 2s²2p⁵ – 2s²2p⁴(³P)3d, лежащие в области 7–9 nm, наличие которых говорит об абляции стенки капилляра. В случае смеси аргон–гелий их интенсивность во всем диапазоне давлений была всегда ниже интенсивности линий рабочего газа (рис. 5), в случае CO₂ газа их интенсивность существенно снижалась при давлении более 1.2 Torr. На рис. 5 представлены интегральные зависимости интенсивности (площадь под контуром спектральной линии) свечения ионов Ar IX, CV, Si VI от рабочего давления.

Как видно из рис. 5, при увеличении давления интенсивность свечения всех компонент эмиссионного спектра снижается, что объясняется уменьшением степени ионизации плазмы и, возможно, поглощением излучения в остаточном газе при повышении давления. Вместе с тем при определенном давлении наблюдаются максимумы излучения линий Ar IX при 1.5 Torr и CV при 1.2 Torr. Интенсивность свечения иона кремния Si VI в случае смеси Ar–He резко падает при повышении давления более 2 Torr, в случае CO₂ его интенсивность падает практически линейно при увеличении давления. Такая разница в поведении свечения ионов кремния от давления, по-видимому, связана с ролью гелия в газовой смеси, наличие которого увеличивает ресурс капилляра за счет снижения интенсивности абляции стенки. Таким образом, регулируя давление газа при его пробое короткими импульсами напряжения, появляется возможность минимизации абляции стенки при сохранении достаточно высокой интенсивности свечения многозарядных ионов.

Отдельно отметим вопрос о ресурсе капилляра. В настоящей работе после ~ 50 000 импульсов в частотно-пачечном режиме снижения интенсивности свечения линий спектра в диапазоне 2–10 nm не наблюдалось, их интенсивность оставалась постоянной. Также не наблюдалось существенного увеличения внутреннего диаметра самого капилляра. Все это можно объяснить использованием коротких наносекундных импульсов напряжения для инициирования плазмы, что, очевидно, снижает эрозию стенки капилляра. Однако дальнейшие исследования времени жизни (ресурса) и влияния материала капилляра на параметры плазмы требуют дополнительных экспериментов.

Заключение

В работе были представлены результаты экспериментов, проведенные на компактном газоразрядном ис-

точнике МРИ. Показано, что быстрая зарядка накопительной емкости на капилляре приводит к существенному увеличению скорости роста разрядного тока ($\sim 2 \cdot 10^{12}$ A/s), что дает возможность достижения высокой степени ионизации даже при пробое молекулярных газов. Низкая индуктивность разрядного контура позволяет достигать высокой амплитуды тока — в настоящей работе более 18 кА. Эти факторы приводят к эффективному энергокладу электрической энергии в плазму, а короткие импульсы напряжения и тока снижают интенсивность процесса абляции стенки капилляра.

В работе проведена оптимизация рабочих давлений для смеси Ag:He и CO₂ газа. Показана возможность достижения режимов генерации излучения без существенного испарения стенки материала капилляра. В спектрах капиллярной плазмы зарегистрированы линии многозарядных ионов, лежащие в области „углеродного“ и „водяного окна“: Ag IX — 4.78 nm, C V — 4.02 nm. Линии могут быть выделены при помощи свободновисящих тонкопленочных фильтров.

Источник позволяет генерировать импульсы МРИ с частотой до 600 Hz, более высокие частоты будут достигнуты при встраивании системы охлаждения разрядного узла. Полученные результаты могут в дальнейшем быть использованы при создании микроскопа для исследования клеточных культур и других нано-биообъектов в режиме на просвет.

Финансирование работы

Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 21-79-10110).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M. Kördel, A. Dehlinger, C. Seim, U. Vogt, E. Fogelqvist, J.A. Sellberg, H. Stiel, H.M. Hertz. *Optica*, **7** (6), 658 (2020). DOI: 10.1364/OPTICA.393014
- [2] A. Artukov, I. Vinogradov, Y. Bugayev, Y. Devizenko, V. Kondratenko, Y. Kasyanov. *J. Exp. Theor. Phys.*, **109** (5), 872 (2009). DOI: 10.1134/S1063776109110156
- [3] E.S. Wyndham, M. Favre, M.P. Valdivia, J.C. Valenzuela, H. Chuaqui, H. Bhuyan. *Rev. Sci. Instrum.*, **81** (9), 093502–8 (2010). DOI: 10.1063/1.3482070
- [4] H. Avaria, G. Guzman, F. Ruiz, M. Favre, M. Wyndham, E. Bhuyan, H. Chuaqui. *Plasma Sources Sci. Technol.*, **18**, 045014 (2009). DOI: 10.1088/0963-0252/18/4/045014
- [5] J. Vieker, K. Bergmann. *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **50** (34), 345601 (2017). DOI: 10.1088/1361-6463/aa7c9f
- [6] M.P. Valdivia, E.S. Wyndham, M. Favre, J.C. Valenzuela, H. Chuaqui, H. Bhuyan. *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (2), 025011 (2012). DOI: 10.1088/0963-0252/21/2/025011
- [7] N.I. Chkhalo, M.N. Drozdov, S.A. Gusev, E.B. Klunokov, A.Y. Lopatin, V.I. Luchin. *Proc. SPIE*, **8076**, 1–11 (2011). DOI: 10.1117/12.886781
- [8] I.I. Sobel'man, A.P. Shevelko, O.F. Yakushev, L.V. Knight, R.S. Turley. *Quant. Electron.*, **33** (1), 3–6 (2003). DOI: 10.1070/qe2003v033n01abeh002357
- [9] Atomic Spectra Database NIST [Электронный ресурс]. Режим доступа: <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>, свободный. (дата обращения: 26.04.2022).