

О генерации интенсивного рентгеновского излучения К-серии цезия при электронном возбуждении Мо-мишени, термически обработанной в парах Cs и O₂

А. Г. Турьянский¹⁾, Н. С. Воробьев*, С. С. Гижа⁺, В. А. Макушина*, Ю. М. Михальков*,
А. В. Смирнов*, И. В. Пиршин⁺, В. М. Сенков⁺, Е. В. Шашков*, Р. И. Фишман⁺,
М. З. Зиятдинова⁺, А. С. Комельков*

⁺Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

*Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 октября 2020 г.

После переработки 26 октября 2020 г.

Принята к публикации 27 октября 2020 г.

Показана возможность устойчивой генерации интенсивного характеристического излучения Cs при электронном возбуждении анодной Мо-мишени, термически обработанной в парах Cs и O₂. Источником излучения являлась микрофокусная рентгеновская трубка прострельного типа с бериллиевым окном и фотокатодом S20. На исходной мишени в виде пленки Мо толщиной 1 мкм в процессе термообработки формировался слой Cs–Mo–O. Измерения спектров L и K серий проводились в диапазоне напряжений анод–катод 10 ÷ 47 кВ. Устойчивый режим генерации наблюдался при плотности мощности потока электронов 600 Вт/см². Энергия спектральной линии CsK_β находится в области пиков фотопоглощения I и Хе, широко используемых в медицинской диагностике в составе контрастирующих агентов. Это обеспечивает получение 2D и 3D изображений с максимальным контрастом.

DOI: 10.31857/S123456782023010X

Генерация интенсивного монохроматического рентгеновского излучения в области энергий $33 < E < 40$ кэВ является одной из наиболее актуальных задач рентгеновской диагностики. Интерес к указанному диапазону обусловлен тем, что для контрастирования сосудистых систем и внутренних полостей биологических объектов в большинстве случаев используются соединения йода и инертный газ ксенон, для которых пики К-скачков фотопоглощения находятся в указанном диапазоне энергий. В настоящее время применяются три основных варианта рентгеновских источников для генерации квазимонохроматического излучения в жесткой области спектра, включая указанную полосу спектра: 1) ондуляторы на синхротронах [1–3], 2) лазерно-электронные источники на эффекте обратного комптоновского рассеяния фотонов [4–6], 3) источники параметрического рентгеновского излучения, генерируемого при прохождении высокоэнергетичных электронов через ориентированный кристалл [7–9]. Перечисленные средства генерации обладают по меньшей мере двумя важными недостатками. Во-первых, генерация излучения

наблюдается в узком телесном угле, и поэтому требуются средства быстрой пространственной развертки рентгеновского пучка по полной зоне исследования, которая может превышать 30 ÷ 40 см. Однако эффективного решения этой проблемы в жесткой области рентгеновского спектра не предложено. Во-вторых, жестким требованием для применения диагностической системы (ДС) в медицинской практике является возможность сравнительно быстрого углового сканирования ДС при стационарном положении объекта исследования. Пока это практически невыполнимо при использовании разработанных вариантов электронных ускорителей. В силу указанных причин проекционные и томографические исследования на синхротронных и лазерно-электронных источниках проводятся на мелких лабораторных животных и фантомах.

По табулированным данным для К-серии рентгеновских спектров [10] цезий является одним из оптимальных химических элементов для генерации интенсивных спектральных линий в области пиков К-скачков фотопоглощения Хе и I. Однако цезий – это один из наиболее химически активных щелочных металлов с температурой плавления 28.4 °С [11, 12]. Поэтому применение анодной мишени из цезия и его

¹⁾e-mail: algoe-tour@yandex.ru

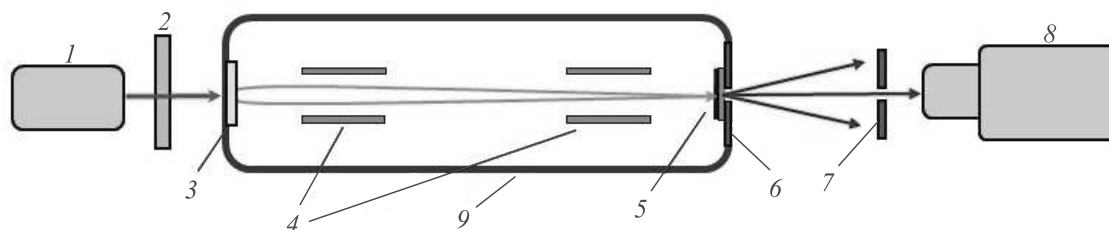


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема генерации и измерения рентгеновских спектров излучения: 1 – оптический лазер; 2 – оптический фильтр; 3 – фотокатод; 4 – фокусирующие электроды; 5 – анод; 6, 7 – диафрагмы; 8 – рентгеновский спектрометр; 9 – корпус рентгеновского излучателя

соединений считалось бесперспективным и ранее не рассматривалось.

В настоящей работе впервые показано, что при обработке анодной Мо-мишени в парах Cs и O₂ может быть получен термически стойкий слой соединения Cs–Mo–O и устойчивая генерация L и K-серий характеристического рентгеновского излучения Cs. Это позволяет решить рассмотренную выше диагностическую задачу получения рентгеновских изображений с максимальным контрастом без применения сложных экспериментальных систем на базе электронных ускорителей.

Для проведения сравнительных измерений были изготовлены два рентгеновских излучателя, представляющих собой стеклянную вакуумную трубку длиной 200 мм и диаметром 50 мм с кольцевыми металлическими электродами, внутри которой смонтирована электронно-оптическая система (ЭОС). ЭОС состоит из прозрачного входного окна из молибденового стекла, на котором сформирован полупрозрачный фотокатод мультищелочного типа S-20 (Cs–Na–K–Sb), двух фокусирующих электродов и анода. Анод представляет собой бериллиевое выходное окно толщиной 250 мкм, на которое с внутренней стороны нанесена молибденовая пленка-мишень толщиной 1 мкм. Бериллиевая фольга припаивалась к диску из кобальта с центральным отверстием диаметром 3 мм для вывода рентгеновского пучка.

Фотокатод рентгеновского излучателя изготавливался по стандартной технологии, включающей последовательный напуск в объем трубки при температуре 170–220 °С паров Sb и щелочноземельных элементов, их последующую откачку и контроль процесса по величине тока фотокатода. Заключительными операциями являлись напуск паров Cs и последующая сенсибилизация в парах кислорода, которые проводились в течение 10 мин. Особенностью такого

метода формирования фотокатода является то, что пары щелочных металлов могут осаждаться на всех элементах излучателя, в том числе и на мишени. При этом основную роль играют процессы абсорбции и десорбции на элементах устройства, а также температурный градиент вдоль оси излучателя. Для снижения скорости десорбции цезия на мишени, давление паров которого максимально, вдоль оси одной из трубок создавался равномерный градиент температуры с разницей температур катод-анод в диапазоне 20–30 °С. Напуск кислорода способствовал интенсивной реакции взаимодействия адсорбированного Cs и Мо и формированию на мишени слоя Cs–Mo–O. При этом наиболее вероятно формирование в объеме мишени слоя термически устойчивых молибдатов цезия [13], образующих гомологический ряд Cs₂Mo_nO_{3n+1}. Вторая трубка изготавливалась по стандартной технологии без градиента температуры.

Экспериментальная схема измерения показана на рис. 1. Возбуждение фотокатода осуществлялось с помощью полупроводникового лазерного модуля S-12, генерирующего непрерывное оптическое излучение на длине волны 540 нм. Изменение интенсивности оптического излучения осуществлялось с помощью сменного оптического фильтра 2. Оптическое излучение через стеклянный корпус рентгеновской трубки 9 направлялось на фотокатод 3. Поток фотоэлектронов фокусировался с помощью электростатических линз 4 и направлялся на анод 5. Электростатическая фокусировка обеспечивала линейный размер фокуса в диапазоне 70 ÷ 120 мкм. На расстоянии 78 мм от выходного окна рентгеновского источника устанавливалась диафрагма 7 с диаметром отверстия 0.55 мм и полупроводниковый рентгеновский спектрометр 8 SDD типа (Amptek). Указанная схема обеспечивала коллимацию первичного излучения от анода и практически устраняла попадание вторич-

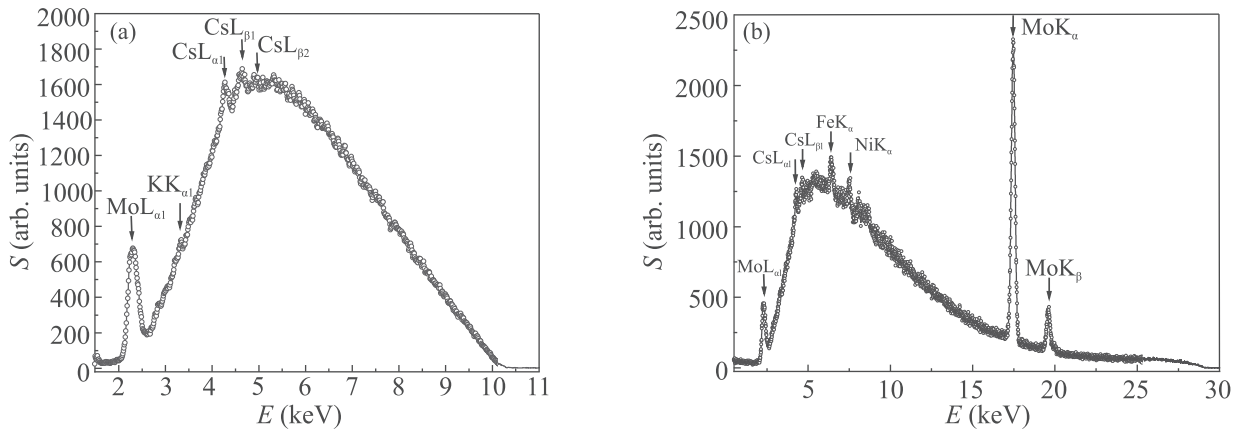


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры рентгеновского источника на расстоянии 78 мм от анода (обработка мишени без градиента температуры анод-катод): (a) – 10 кэВ; (b) – 30 кэВ

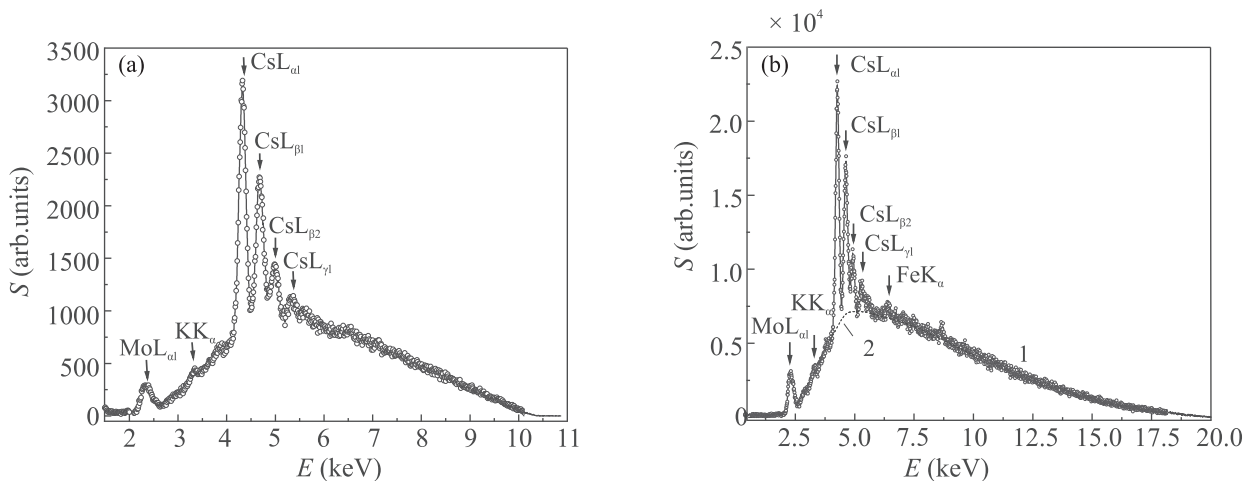


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры рентгеновского источника на расстоянии 78 мм от анода (обработка мишени с градиентом температуры анод-катод): (a) – 10 кэВ; (b) – 20 кэВ

ного флуоресцентного излучения от адсорбированных слоев на стенках рентгеновской трубки. Спектрометрические измерения проводились в воздухе. Для устранения влияния аппаратных искажений излучение лазера ослаблялось фильтрами, чтобы обеспечить скорость счета рентгеновских квантов в диапазоне $(2 \div 5) \cdot 10^3$ фотон/с. В связи с насыщением фототока фотокатода на уровне $1 \div 1.2$ мкА максимальная плотность мощности в фокусе рентгеновской трубки при 30 кэВ составляла для фокусного пятна диаметром 70 и 100 мкм соответственно 600 и 300 Вт/см².

Спектры рентгеновского излучателя, изготовленного по стандартной технологии без градиента температуры анод-катод, при ускоряющем напряжении 10 и 30 кэВ показаны соответственно на рис. 2а и б. На спектре, полученном при 10 кэВ, присутствуют

слабые пики К-серии калия и L-серии цезия, находящиеся в поверхностном слое мишени. При увеличении ускоряющего напряжения до 30 кэВ в спектре доминируют интенсивные спектральные линии К-серии молибдена. Появление слабых спектральных линий К-серии железа и никеля связано с возбуждением первичным рентгеновским пучком флуоресценции в боковой стенке отверстия в диске из кобальта.

Спектры рентгеновского излучателя, изготовленного с градиентом температуры анод-катод, при ускоряющем напряжении 10 и 20 кэВ показаны соответственно на рис. 3а и б. Интегральная интенсивность спектральных линий рассчитывалась путем вычитания из полного сигнала профиля тормозного излучения (кривая 2 на рис. 3б). Из сравнения результатов, представленных на рис. 2 и 3, следует, что интенсивность линии KK_{α} калия сохраняется

приблизительно на прежнем уровне, а интенсивность спектральных линий L-серии Cs увеличивается в 26 раз. Это свидетельствует о формировании на поверхности анодной мишени слоя из соединений цезия, устойчивого к электронной бомбардировке. Полагая угловую диаграмму излучения из микрофокуса изотропной, получаем, что полный первичный поток излучения L-серии Cs при энергии электронов 20 кэВ и мощности 1 Вт составляет $\sim 10^{11}$ фотон/с. Вследствие поглощения в материале анода и бериллиевого окна излучателя плотность потока в направлении оси источника снижается приблизительно в два раза.

Принципиальный вопрос для практического применения рентгеновского источника – стабильность генерации излучения. На рисунке 4 показаны ре-

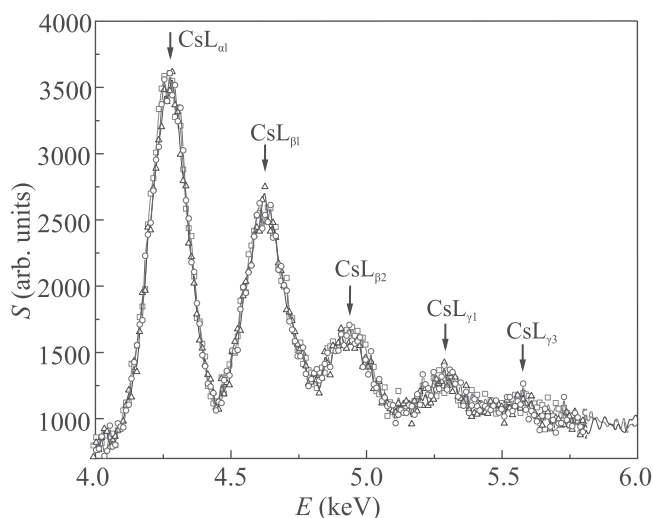


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры рентгеновского источника в области L-серии Cs (обработка мишени с градиентом температуры анод-катод), измеренные с интервалом между началом сбора 500 с при ускоряющем напряжении 10 кэВ

зультаты трех последовательных измерений L-серии Cs, полученных с интервалом между сборами данных 200 с и экспозиции 300 с при ускоряющем напряжении 10 кэВ. Полученное отклонение интегральных значений сумм фотонов в области 4–6 кэВ от среднего значения не превышает 0.7%. Это подтверждает высокую стабильность генерации характеристического рентгеновского спектра Cs. При повторных экспериментах, которые проводились с интервалом 3 месяца, дрейф параметров составил не более 1–2%.

Необходимым условием возбуждения в мишени К-серии спектра Cs является превышение энергии электронов порога возбуждения, равного 36.99 кэВ [14]. На рисунке 5а представлен экспериментальный спектр излучения трубки, полученный при ускоряю-

щем напряжении 47 кэВ с использованием составного фильтра 100 мкм Cu + 320 мкм Al. Спектр содержит линии К-серии Cs. Дуплет линий $CsK_{\alpha 1}$ (30.97 кэВ) и $CsK_{\alpha 2}$ (30.63 кэВ) достаточно хорошо разделяется спектрометром. В триplete $CsK_{\beta 1}$ (34.99 кэВ), $CsK_{\beta 2}$ (35.82 кэВ), $CsK_{\beta 3}$ (34.92 кэВ) близкие по энергии линии $CsK_{\beta 1}$ и $CsK_{\beta 3}$ не разделяются. Помимо К-серий Mo и Cs в спектре присутствуют также линии серебра AgK_{α} и AgK_{β} . Это связано с применением серебряного припоя, часть которого попадает в зону выходного окна рентгеновской трубки. Отметим, что хотя верхний порог диапазона измерения кремниевого SDD-спектрометра составляет 40 кэВ, при энергии фотонов $E > 20$ кэВ эффективность регистрации существенно снижается и при $E = 30$ кэВ составляет 14%.

Для сопоставления интенсивности линий К-серии спектра Cs без наложения тормозного спектра на рис. 5b показана зависимость $I(E) = S(E) - B(E) + U$, где $S(E)$ – экспериментальная зависимость, $B(E)$ – кривая, описывающая энергетическую зависимость тормозного излучения, U – произвольная константа уровня сигнала. Сравнение интенсивности K_{α} линий Mo и Cs позволяет оценить отношение количества атомов Cs и Mo, возбуждаемых электронами в анодной мишени, соответственно N_{Cs} и N_{Mo} . С учетом экспериментальных параметров и зависимости интенсивности флуоресценции от ускоряющего напряжения [15] величина отношения N_{Cs}/N_{Mo} находится в пределах $0.05 \div 0.1$. Это соответствует отношению массы цезия к массе молибдена на анодной мишени $0.07 \div 0.14$.

Экспериментально измеренный полный поток излучения линий К-серии более чем на порядок величины меньше, чем для L-серии. Это обусловлено тем, что расчетная глубина проникновения электронов в Mo при энергии электронов 10 и 47 кэВ составляет соответственно 0.42 и 5.8 мкм [16]. Кроме того, для массивной мишени максимальная по интенсивности генерация К-серии достигается при энергии электронов равной 3 ÷ 4 порогам возбуждения [15]. Очевидно, что при оптимизации по толщине слоя Cs–Mo–O и существенного повышению энергии электронов по сравнению с порогом возбуждения интенсивность линий К-серии может быть увеличена приблизительно на 2.5 ÷ 3 порядка. В медицинской диагностике обычно используются рентгеновские источники с размером фокуса 0.3 ÷ 0.8 мм, что существенно больше размера фокуса экспериментального излучателя. Возможность резкого повышения тока трубки при увеличении размера фокуса и применение вращающегося анода для распределения тепловой нагрузки

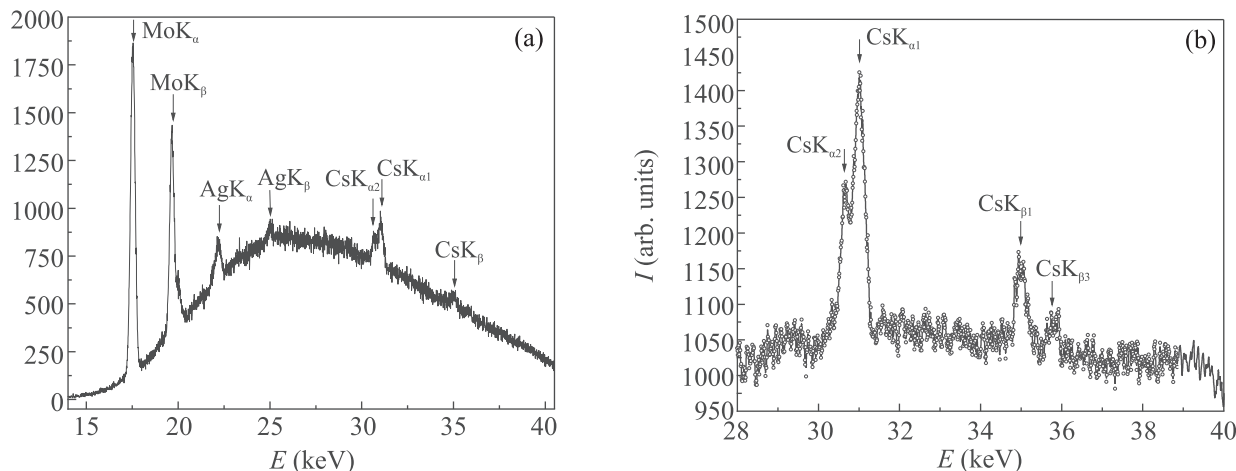


Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектры рентгеновского излучения при ускоряющем напряжении 47 кВ: (а) – в широкой области спектра 10–40 кВ; (б) – в области К-серии Cs с коррекцией тормозного спектра

позволяют дополнительно повысить интенсивность излучения еще на несколько порядков. Таким образом, резкое повышение мощности излучения в жесткой части К-серии спектра Cs не представляет принципиальных проблем и требуемые для медицинских исследований потоки могут быть достигнуты.

В заключение отметим, что для выделения и режекции спектральных линий Cs могут достаточно эффективно применяться как элементы многослойной зеркальной оптики, так и мозаичные кристаллические структуры [17–19]. При этом возможно формирование монохроматических пучков веерной геометрии и достигается максимальный контраст изображения. В случае конусной геометрии пучков возможна только фильтрация с помощью селективных фильтров и в результате частичного прохождения полихроматического тормозного спектра контраст изображения снижается. Однако вследствие относительно высокой весовой доли спектральной линии Cs в области скачка фотопоглощения йода или ксенона контраст изображения оказывается также существенно выше по сравнению с полихроматическими спектрами источников на базе стандартных рентгеновских трубок.

1. W. Thomlinson, H. Elleaume, L. Porra, and P. Suortti, *Phys. Med.* **49**, 58 (2018).
2. N. Samadi, M. Martinson, B. Basse, A. Gomez, G. Belev, and D. Chapman, *AIP Conf. Proc.* **1741**, 040004 (2016).
3. M. S. Platunov, V. A. Dudnikov, Y. S. Orlov, N. V. Kazak, L. A. Solovyov, Ya. V. Zubavichus, A. A. Veligzhanin, P. V. Dorovatovskii, S. N. Vere-

- shchagin, K. A. Shaykhutdinov, and S. G. Ovchinnikov, *JETP Lett.* **103**, 196 (2016).
4. S. Kulpe, M. Dierolf, B. Günther, M. Busse, K. Achterhold, B. Gleich, J. Herzen, and F. Pfeiffer, *Sci. Rep.* **9**, 13332 (2019).
5. Е. Г. Бессонов, А. В. Виноградов, М. В. Горбунков, А. Г. Турьянский, Р. М. Фещенко, Ю. В. Шабалин, *УФН* **173**(8), 899 (2003).
6. E. G. Bessonov, A. V. Vinogradov, and A. G. Tourianskii, *Instruments and Experimental Techniques* **45**(5), 718 (2002).
7. J. Hyun, M. Satoh, M. Yoshida, T. Sakai, Y. Hayakawa, T. Tanaka, K. Hayakawa, I. Sato, and K. Endo, *Phys. Rev. Accel. Beams* **21**, 014701 (2018).
8. K. B. Korotchenko, Y. L. Pivovarov, and Y. Takabayashi, *JETP Lett.* **95**, 433 (2012).
9. Y. Takahashi, Y. Hayakawa, T. Kuwada, T. Tanaka, T. Sakae, K. Nakao, K. Nogami, M. Imagaki, K. Hayakawa, and I. Sato, *X-Ray Spectrometry* **41**(4), 210 (2012).
10. М. А. Блохин, И. Г. Швейцер, *Рентгеноспектральный справочник*, Наука, М. (1982).
11. Р. А. Лидин, В. А. Молочко, Л. Л. Андреева, *Химические свойства неорганических веществ*, 3-е изд., Химия, М. (2000).
12. W. M. Haynes, *CRC handbook of chemistry and physics*, Internet Version 2011, Taylor Francis Group, Boca Raton, FL (2011).
13. О. Фабричная, *Cs–Mo–O (Cesium-Molybdenum-Oxygen). Landolt-Börnstein – Group IV Physical Chemistry 11C4 (Non-Ferrous Metal Systems. Part 4)*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2007).
14. M. Sánchez del Rio, A. Brunetti, B. Golosio, A. Somogyi, and A. Simionovici, *XRAYLIB tables (X-ray fluorescence cross-section). Calculations*

- using XRAYLIB 2.3, November 14, 2003, http://ftp.esrf.fr/pub/scisoft/xraylib/xraylib_tables_v2.3.pdf.
15. N. A. Dyson, *X-rays in Atomic and Nuclear Physics*, 2nd ed., Cambridge University Press, Cambridge (1990).
 16. K. Kanaya and S. Okayama, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **5**(1), 43 (1972).
 17. A. G. Turyanskiy and S. S. Gizha, *X-Ray Spectrom.* **49**(3), 434 (2020).
 18. A. G. Tur'yanskii, S. S. Gizha, V. M. Senkov, I. V. Pirshina, and Ya. M. Stanishevskii, *JETP Lett.* **104**, 417 (2016).
 19. M. Yanagihara and K. Yamashita, *Multilayers for Soft and Hard X-rays. X-ray Spectrometry: Recent Technological Advances*, John Wiley and Sons, Chichester, England (2004).