

## Исследование эмиссионного спектра быстрого капиллярного разряда в области „водяного окна“

© А.А. Самохвалов,<sup>1,2</sup> К.А. Сергушичев,<sup>2</sup> С.И. Елисеев,<sup>2,3</sup> Т.П. Бронзов,<sup>2</sup> Е.П. Большаков,<sup>2</sup> Д.В. Гетман,<sup>2</sup> А.А. Смирнов<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Университет ИТМО,  
197101 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Лаборатория им. В.А. Бурцева,  
197022 Санкт-Петербург, Россия

<sup>3</sup> Санкт-Петербургский государственный университет,  
199034 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: samokhvalov.itmo@gmail.com

Поступило в Редакцию 31 марта 2023 г.

В окончательной редакции 31 марта 2023 г.

Принято к публикации 31 марта 2023 г.

Представлены результаты экспериментов по генерации импульсов мягкого рентгеновского излучения в области „водяного окна“, выполненные на компактном газоразрядном источнике. Проведена оптимизация параметров источника излучения, исходя из условий уменьшения интенсивности абляции стенки разрядного объема и получения максимальной интенсивности в эмиссионном спектре капиллярной плазмы линии гелий-подобного азота N VI — 2.88 nm. Полученные результаты могут быть использованы при разработке микроскопа для задач клеточной микроскопии на просвет с нанометровым разрешением.

**Ключевые слова:** капиллярная плазма, мягкое рентгеновское излучение, водяное окно, абляция, эмиссионная спектроскопия.

DOI: 10.21883/JTF.2023.07.55740.64-23

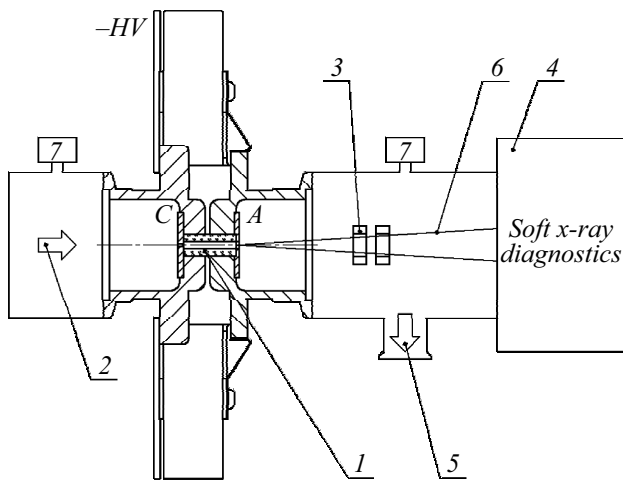
### Введение

Область длин волн 2.3–4.4 nm является уникальным спектральным диапазоном, так называемым „водяным окном“. В нем вода является частично прозрачной, а остальные соединения и вещества сильно поглощают излучение данного спектрального участка. Этот факт дает возможность получить натуральный контраст между, например, углерод-, азотсодержащими соединениями и водой, что обеспечивает широкие возможности для микроскопии и томографии живых и подготовленных (замороженных) клеточных культур и различных нано-, биообъектов. Разрешающая способность данного метода микроскопии достигает ~10 nm, что было показано при исследовании различных клеточных биокультур [1]. Однако в качестве источника излучения для такого вида микроскопии используется синхротронное излучение [2]. Этот факт является главным ограничением для широкого распространения метода микроскопии в „водяном окне“ в биомедицинских исследованиях, а большинство исследователей даже не слышало о таком методе.

За последние 20 лет было сделано множество попыток по созданию компактных источников в данном спектральном диапазоне, одним из наиболее удачных является капиллярный разряд (Z-пинч) в азоте [3]. Излучение капиллярного разряда обладает высокой направленностью, типичная величина расходимости излучения Z-пинча составляет 5–30 mrad [4,5]. Вместе с тем при разряде в азоте в спектре капиллярной плазмы

наблюдается интенсивная линия гелий-подобного азота N VI — 2.88 nm ( $1s^2 - 1s2p$ ), которую можно выделить с помощью специальных тонкопленочных фильтров [6]. Это дает возможность получения направленного и квазимонохроматического излучения, которое требуется для задач микроскопии в „водяном окне“. Кроме того, эти факторы позволяют использовать дифракционную оптику — зонную пластинку Френеля, которая уже давно применяется на синхротронных источниках и технология изготовления которой за последние годы значительно усовершенствовалась.

Вместе с тем активно развиваются источники мягкого рентгеновского излучения на базе лазерной плазмы. В таких источниках в качестве мишени используется газовая струя, подаваемая в импульсном режиме через сопло [7]. К их достоинствам относится высокая спектральная яркость и отсутствие продуктов абляции в вакуумной системе. С другой стороны, для транспортировки излучения лазерной плазмы необходимы специальные многослойные зеркала, эффективность которых в диапазоне „водяного окна“ достигает ~5% [8], а их изготовление представляет отдельную трудоемкую технологическую задачу. Кроме того, стоимость лазерных источников, работающих с частотой следования импульсов более 20 Hz при необходимой энергии в импульсе (более 0.5 J), остается высокой. Ясно, что оба типа источников имеют свои особенности, поэтому на сегодняшний день исследования в данных областях активно продолжаются.



**Рис. 1.** Схема экспериментальной установки: 1 – капилляр, 2 – направление потока газа, 3 – тонкопленочные фильтры, 4 – место установки фотодиода и спектрометра, 5 – направление откачки газа турбомолекулярным насосом, 6 – направление пучка мягкого рентгеновского пучка, 7 – место установки датчиков давления, C – катод, A – анод.

Очевидно, что для эффективного использования газоразрядных источников требуется проведение ряда экспериментальных исследований по оптимизации геометрии разрядной области, рабочего давления газа и других параметров. В настоящей работе проводится исследование и оптимизация параметров компактного источника излучения на основе наносекундного капиллярного разряда для его работы на длине волны 2.88 nm.

## 1. Экспериментальная установка

Конструкция компактного источника мягкого рентгеновского излучения (МРИ) на основе капиллярного разряда и вся измерительная техника были подробно описаны в нашей предыдущей работе [9]. В ней нам удалось частично решить проблему „загрязнения“ спектра плазмы спектральными линиями элементов, из которых сделан капилляр путем уменьшения длительности импульса напряжения и регулировки давления рабочего газа. Но в настоящей работе капилляр был изготовлен из керамики  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , что обусловлено более высокой термической и механической прочностью данного материала, чем у боросиликатного стекла и отсутствием у ионов кремния линий в области, близкой к „водяному окну“. Внутренний диаметр капилляра составлял 1.5 mm, а длина 20 mm.

Для диагностики излучения в наших экспериментах использовался кремниевый фотодиод ФДУК-1 (изготовлен в ФТИ им. Иоффе) с размером активной области  $1\text{ mm}^2$ , это давало возможность регистрировать временной профиль импульса излучения с разрешением не хуже  $\sim 1\text{ ns}$ . Паспортная чувствительность данного фотодиода в области длин волн 2–10 nm составляла

$\sim 0.26\text{ A/W}$ . Перед фотодиодом были установлены два свободностоящих тонкопленочных фильтра первый Al, второй представлял собой композицию Ti–C, толщины фильтров составляли  $\sim 200\text{ nm}$ . 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.

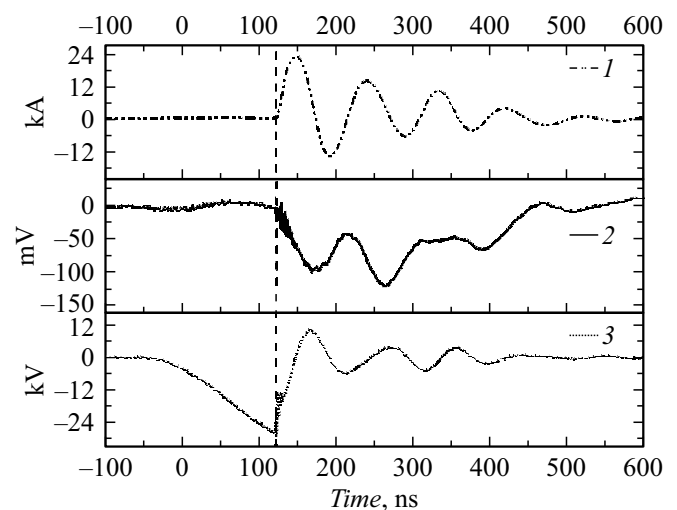
Регистрация спектров капиллярной плазмы осуществлялась с помощью спектрометра скользящего падения GIS-2 с дифракционной решеткой  $1200\text{ mm}^{-1}$ , в качестве детектора использовалась ПЗС-линейка Toshiba 1304 с нанесенным на нее люминофором, спектральное разрешение спектрометра  $\lambda/\Delta\lambda$  составляло  $\sim 200$ .

Импульс тока регистрировался петлей Роговского, для измерения импульса напряжения использовался высоковольтный делитель. Все сигналы записывались четырехканальным осциллографом Tektronix DPO-7104C на полосе пропускания 1 GHz и усреднялись по 20 импульсам, спектры усреднялись также по 20 разрядам. В экспериментах амплитуда импульса напряжения достигала 27 kV, скорость нарастания тока  $\sim 2 \cdot 10^{12}\text{ A/s}$  при его амплитуде 23 kA, энергия, запасаемая в ударной емкости источника, составляла 5 J, источник работал на частоте 300 Hz. В данных экспериментах в качестве рабочего газа использовался только азот особой чистоты (99.99%).

## 2. Экспериментальные результаты

На рис. 2 представлены типичные осциллограммы импульсов тока, импульса излучения и напряжения при разряде в азоте.

Вертикальной штриховой линией на рис. 2 обозначен момент пробоя зазора катод–анод, который ха-

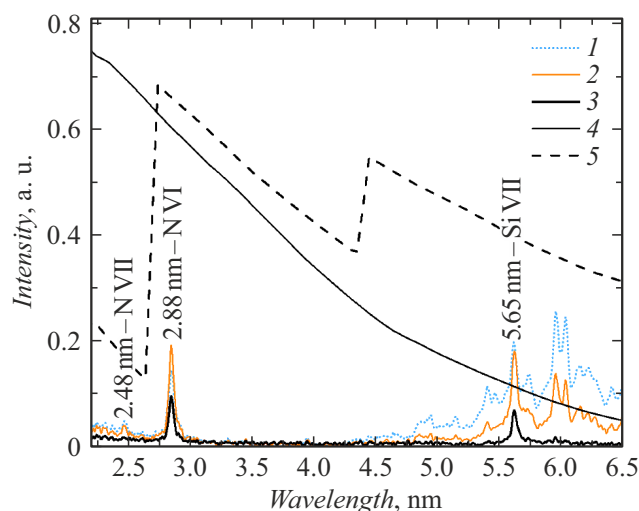


**Рис. 2.** Типичные осциллограммы при разряде в чистом азоте при рабочем давлении 1.5 Torr: импульса тока (1), импульса излучения через комбинацию Al и Ti–C фильтров (2), импульса напряжения (3).

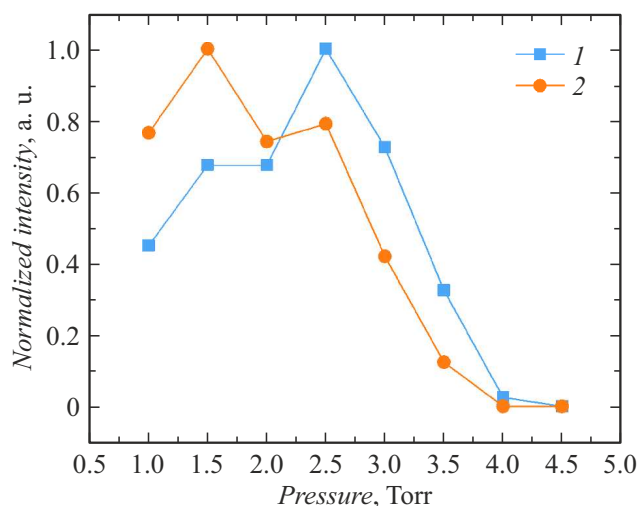
рактируется резким сколом заднего фронта импульса напряжения и появлением импульса тока, с которым совпадает появление импульса излучения. Подобная динамика электрофизических параметров наблюдалась и при пробое в  $\text{CO}_2$  в нашей работе [9]. Интересно отметить, что в импульсе излучения наблюдаются два выраженных максимума, смещенные от первых двух положительных полуциклов тока на время  $\sim 20$  ns, при этом амплитуда второго максимума выше первого. Данный характер свечения капиллярной плазмы определяется гидродинамическими процессами обжатия, возникающими при больших токах, которые протекают через плазменный шнур. Однако от давления рабочего газа динамика электрофизических параметров существенно не менялась, в свою очередь значительно менялась интенсивность мягкого рентгеновского излучения. Поэтому для качественного анализа были проанализированы эмиссионные спектры капиллярной плазмы, что представлено на рис. 3, где приведены характерные эмиссионные спектры капиллярного разряда в азоте при различных давлениях рабочего газа.

Как видно из рис. 3, в спектре наблюдаются линии гелийподобного N VI — 2.88 nm,  $1s^2-1s2p$  и водородоподобного азота N VII — 2.48 nm,  $1s-2p$ . Вместе с тем из-за процессов взаимодействия плазмы со стенкой капилляра и его последующей абляцией в спектре возникали ионы кремния Si VII, но линий в области 3–4.5 nm не наблюдалось. На рис. 3 также показаны спектры пропускания фильтров, откуда следует, что линии кремния блокируются комбинацией Al- и Ti-фильтров, давая возможность выделить линию азота N VI — 2.88 nm.

Как видно из спектров, даже небольшое изменение давления газа приводило к значительному изменению



**Рис. 3.** Спектры излучения капиллярной плазмы азота при различных давлениях: 1 — 2.5, 2 — 3, 3 — 3.5 Torr, 4 — спектр пропускания алюминиевого фильтра, 5 — спектр пропускания титанового фильтра.



**Рис. 4.** Зависимости интенсивности свечения спектральных линий N VI — 2.88 nm (1) и Si VII — 5.62 nm (2) от давления газа.

эмиссионного спектра, при давлении 3.5 Torr исчезали линии кремния, а интенсивность линии азота N VI на длине волны 2.88 nm была существенно выше линии кремния на длине волны 5.65 nm. В целом при увеличении давления интенсивность как линий азота, так и линий кремния начинала резко падать. На рис. 4 приведены нормированные интегральные зависимости спектральных линий от давления газа.

Зависимость интенсивности спектральных линий от давления имеет экстремальный характер, как видно из рис. 4, при этом линии азота и кремния достигают максимумов при различных давлениях. Это дает возможность достигать условий, при которых абляция стенки минимальная при относительно высокой интенсивности линии азота. Что как раз и требуется для задач микроскопии в „водяном окне“, т.е. получения монохроматического излучения.

## Заключение

В работе представлены результаты экспериментов, проведенных на компактном газоразрядном источнике МРИ, где в качестве рабочего газа использовался чистый азот. Показана возможность получения одиночной спектральной линии гелийподобного иона азота на длине волны 2.88 nm, попадающей в область „водяного окна“. Источник позволяет генерировать импульсы МРИ с частотой до 300 Hz, в дальнейшем планируется увеличить частоту следования импульсов за счет модификации высоковольтного генератора.

Полученные результаты могут быть использованы при создании микроскопа и томографа 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] V. Loconte, J.-H. Chen, M. Cortese, A. Ekman, M.A. Le Gros, C. Larabell, R. Bartenschlager, V. Weinhardt. *Cell Rep. Meth.*, **1** (7), 100117 (2022). DOI: 10.1016/j.crmeth.2021.100117
- [3] M.P. Valdivia, E.S. Wyndham, M. Favre, J.C. Valenzuela, H. Chuaqui, H. Bhuyan. *Plasma Sourc. Sci. Technol.*, **21** (2), 025011 (2012). DOI: 10.1088/0963-0252/21/2/025011
- [4] E.S. Wyndham, M. Favre, M.P. Valdivia, J.C. Valenzuela, H. Chuaqui, H. Bhuyan. *Rev. Sci. Instrum.*, **81** (9) (2010). DOI: 10.1063/1.3482070
- [5] M.F. Nawaz, M. Nevrkla, A. Jancarek, A. Torrisi, T. Parkman, J. Turnova, L. Stolcova, M. Vrbova, J. Limpouch, L. Pina, P. Wachulak. *JINST*, **11**, P07002 (2016). DOI: 10.1088/1748-0221/11/07/P07002
- [6] N.I. Chkhalo, M.N. Drozdov, S.A. Gusev, E.B. Kluev, A.Y. Lopatin, V.I. Luchin. *Proc. SPIE*, **8076**, 807600 (2011). DOI: 10.1117/12.886781
- [7] В.Е. Гусева, А.Н. Нечай, А.А. Перекалов, Н.Н. Салашенко, Н.И. Чхало. *ЖТФ*, **92** (8), 1185 (2022). DOI: 10.21883/jtf.2022.08.52781.72-22
- [8] E. Fogelqvist, M. Kördel, V. Carannante, B. Önfelt, H.M. Hertz. *Sci. Rep.*, **7** (1), 13433 (2017). DOI: 10.1038/s41598-017-13538-2
- [9] A.A. Samokhvalov, K.A. Sergushichev, S.I. Eliseev, A.A. Smirnov, T.P. Bronzov, D.V. Getman, E.P. Bolshakov, M.V. Timshina, V.A. Burtsev. *JINST*, **17**, P06002 (2022). DOI: 10.1088/1748-0221/17/06/P06002