Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.612–618 (2023)

УДК 548.732 DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-612

ВОЗМОЖНОСТИ СОЗДАНИЯ РЕНТГЕНОАКУСТИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ ИЗ КРИСТАЛЛОВ СЕМЕЙСТВА БИФТАЛАТОВ С ТОЛЩИННЫМИ КОЛЕБАНИЯМИ

Я.А. ЭЛИОВИЧ², В.Р. КОЧАРЯН¹, А.Е. БЛАГОВ^{2,3}, А.В. ТАРГОНСКИЙ^{2,3}, В.А. КОРЖОВ^{2,3}, А.Е. МОВСИСЯН¹, А.В. ШАХВЕРДЯН¹, С.Н. НОРЕЯН^{1*}, А.Г. МКРТЧЯН^{1,2}, М.В. КОВАЛЬЧУК^{3,4,}

¹Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения ²ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Москва, Россия ³Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Москва, Россия ⁴Институт кристаллографии им. А.Б. Шубникова РАН, Москва, Россия

*e-mail: norser@yandex.ru

(Поступила в редакцию 12 июля 2023 г.)

Исследованы особенности дифракции рентгеновского пучка от пьезокристаллов бифталатов калия и рубидия при условии возбуждения в них поперечных ультразвуковых колебаний. Ранее при аналогичном воздействии в кристаллах кварца нами наблюдался эффект рентгено-акустического перераспределения, при котором существенно увеличивается интенсивность дифрагированного излучения в точном брэгговском положении при одновременном уменьшении интенсивности прошедшего пучка, вплоть до зануления при определенных параметрах воздействия для отражающих атомных плоскостей (1011), получившего название полной переброски. Этот эффект можно использовать для управляемой перестройки интенсивности дифрагированного пучка. С целью поиска новых материалов для изготовления элементов, позволяющих осуществлять такую перестройку, в данной работе изучены зависимости степени усиления дифрагированного излучения от амплитуды управляющего сигнала для кристаллов бифталатов калия и рубидия (БФР). Продемонстрирована фактическая возможность модуляции интенсивности рентгеновского излучения с помощью поперечных колебаний в этих кристаллах.

1. Введение

Экспериментальные методы, основанные на практическом применении рентгеновского излучения, благодаря разнообразию подходов и методик, сегодня являются одним из ключевых инструментов как для проведения фундаментальных исследований в области физики и материаловедения, так и для прикладных исследований в интересах промышленности. Рентгеновское излучение применяется не только для исследований статических объектов и определения их структур, но и для исследования динамических процессов, таких как химические реакции [1], молекулярная динамика [2], морфология полимеров [3] и многих других [4]. Такое развитие методологии рентгеновских исследований привело к

необходимости разработки соответствующего аппаратно-методического обеспечения, необходимого для реализации временного разрешения при проведении измерений. Существует несколько принципиальных подходов к реализации временного разрешения — использование особенностей самого рентгеновского или синхротронного пучка, быстрая детектирующая аппаратура и, наконец, применение особых элементов рентгеновской оптики, которые получили название адаптивных элементов рентгеновской оптики [5, 6].

Такие адаптивные элементы могут устанавливаться вместо монохроматора/анализатора [7, 8] и выступать в качестве эффективного дополнения к традиционно используемым гониометрическим системам, необходимым для точного позиционирования исследуемого объекта относительно рентгеновского пучка, однако не обладающим должным быстродействием в случае, когда необходимо быстро перестраивать параметры экспериментальной схемы прямо в процессе проведения измерений.

Ряд таких элементов, основанных на продольных и изгибных колебаниях, показал высокую эффективность при проведении исследований методами быстрой и прецизионной двух- и трехкристальной рентгеновской дифрактометрии [9] и спектроскопии поглощения [10].

Существует также класс адаптивных рентгенооптических элементов, позволяющих осуществлять управление интенсивностью исследовательского пучка. Такими элементами являются, например, кристаллы кварца [11], в которых наблюдается значительное увеличение интенсивности дифрагированного пучка при возбуждении колебаний на резонансной частоте, соответствующей поперечной моде колебаний. Такая оптика может использоваться для создания рентгеновских пучков с определённой временной структурой, например, линий задержек.

В работе [12] впервые была показана возможность создания комбинированного адаптивного элемента рентгеновской оптики, основанного на одновременном возбуждении взаимно- перпендикулярных ультразвуковых колебаний в продольной и поперечной модах (направления «по длине» и «по толщине»). Такие элементы потенциально позволят осуществлять быструю и прецизионную перестройку сразу нескольких экспериментальных параметров, что еще сильнее расширит возможности экспериментальных методик на их основе.

Целью настоящей работы было исследование особенностей возбуждения поперечной моды колебаний в пьезоэлектриках, что способствует разработке новых рентгенооптических элементов, позволяющих управлять интенсивностью дифрагированного излучения, и в перспективе, получить новые комбинированные адаптивные элементы. С этой целью в данной работе изучено изменение интенсивности отражённого и проходящего пучков, а также полуширины кривой качания отражающих атомных плоскостей кристаллов бифталата калия и рубидия в условиях возбуждения поперечных акустических колебаний в зависимости от амплитуды управляющего сигнала.

2. Методика эксперимента и описание образцов

В работе рассмотрено два типа кристаллических образцов из семейства бифталатов – бифталат рубидия (БФР) и калия (БФК). Исследования образцов проводились с помощью комплекса методов для изучения перспективных материалов, пригодных к изготовлению адаптивных элементов рентгеновской оптики, и включали в себя оценку степени совершенства кристаллической структуры с помощью двухкристальной дифрактометрии, измерения колебательных спектров с помощью автоматического анализатора спектра, а также исследования непосредственно возможностей по управлению параметрами интенсивности рентгеновского пучка.

Рентгенодифракционные исследования проводились по двухкристальной схеме, реализованной на базе лабораторного дифрактометра ТРС. Источник излучения – трубка с Мо- анодом, спектральная линия *К*α1. Использовался кремниевый монохроматор с поверхностью (111), рефлекс 111, угол Брэгга 6.49°. Все измерения проводились в геометрии Лауэ. Для измерения интенсивности рентгеновского пучка использовался сцинтилляционный точечный детектор. Акустический сигнал создавался с помощью генератора Tektronix AFG3022B и усилителя Tabor 9200, с коэффициентом усиления 15.

Монокристаллы БФК (C₈H₅KO₄) и БФР (C₈H₅RbO₄) были выращены методом Чохральского в ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН. Образцы вырезаны в виде плоскопараллельных пластин с нанесённым токопроводящим слоем на лицевые стороны. Ориентация поверхности соответствует направлению [001]. Исследовались образцы кристалла БФР с размерами 47.5 × 14.4 × 2.2 мм³ и БФК с размерами 47.4 × 13.3 × 2.1 мм³. Для обоих образцов регистрировался рефлекс 004 и угол Брэгга 5.8°.

Кристаллы бифталатов обладают рядом уникальных особенностей, что делает их перспективными для проведения исследований и изучения возможностей создания адаптивных элементов рентгеновской оптики на их основе. В молекуле БФК можно выделить четыре структурные группы: бензольное кольцо, карбоксильные группы С–ОН и С=О, а также ионную связь К–О. Кристаллическая структура стабильна благодаря Ван-дер-Ваальсовым связям между бензольными кольцами, водородным связям между карбоксильными группами соседних молекул, а также кулоновским взаимодействиям между ионами калия и ионами карбоксильных групп [13]. Параметры решётки для БФК: a = 6.46 Å, b = 9.6 Å, c = 13.85 Å, для БФР a = 6.541 Å, b = 10.064 Å, c = 13.068 Å [14, 15]. Упругие, пьезоэлектрические и оптические свойства бифталатов характеризуются значительной анизотропией [16] ввиду наличия полярной оси [001] и плоскостей спайности, перпендикулярных направлению [010].

Готовые к работе образцы устанавливались в специальные кристаллодержатели, где с помощью автоматического анализатора спектров Rigol DSA815TG измерялись их амплитудно-частотные характеристики (AЧХ), в которых, согласно расчетам, определялась резонансная частота, отвечающая за колебания по толщине ($f_{rez BFR} = 737.288 \ \kappa \Gamma \mu$, $f_{rez BFK} = 794.648 \ \kappa \Gamma \mu$).

3. Результаты и их обсуждение

Для обоих типов образцов был проведен ряд электромеханических и рентгенодифракционных исследований, в том числе зарегистрированы зависимости интенсивности отраженного и проходящего рентгеновских пучков от амплитуды подаваемого сигнала. На рис.1 представлено сравнение кривых дифракционного отражения (КДО), зарегистрированных в одной и той же точке с одинаковыми



Рис.1. Исходная КДО (1) исследуемого кристалла БФР и ее сравнение с КДО (2) возбужденного кристалла (U = 70 В).

экспериментальными параметрами, где кривая (1) – КДО, полученная для кристалла с выключенным сигналом, а кривая (2) – КДО, полученная при включенном внешнем сигнале.

Хорошо видно, что интенсивность в пике увеличивается практически в два раза, при этом уширения или изменения формы пика КДО не происходит. В указанных параметрах экспериментальной схемы было проведено так называемое амплитудное сканирование – регистрировались полуширина КДО и значения интенсивности в пике КДО в зависимости от амплитуды внешнего сигнала, которая увеличивалась на генераторе с шагом 500 мВ. Результаты данного сканирования представлены на рис.2.

Полученные данные показывают, что по мере увеличения амплитуды сигнала происходит сначала увеличение интенсивности пика брэгговского отражения, а затем – уменьшение, что полностью согласуется с результатами, полученными при проведении ранее аналогичных экспериментов для кристаллов



Рис.2. Зависимость полуширины КДО (1) и интенсивности пика КДО (2) для кристалла БФР от амплитуды внешнего сигнала.

кварца [17]. Особенный интерес также представляют измерения с одновременной регистрацией пучка, отраженного от образца, и пучка, проходящего сквозь образец, установленный в точное брегговское положение на двух разных детекторах. Такие измерения позволяют наглядно наблюдать процесс перекачки интенсивности, как в невозбужденном состоянии образца, так и в условиях возбуждения колебаний. Сравнение полученных результатов представлено на рис.3.



Рис.3. Перераспределение интенсивности проходящих (1) и отраженных (2) пучков для кристалла БФР с одновременной регистрацией: (а) при выключенном сигнале и (b) при включенном сигнале с амплитудой 75 В.

Аналогичные эксперименты были проведены для кристалла БФК. Измерены КДО кристалла в невозбужденном и возбужденном состоянии; пример их сравнения в одной из точек представлен на рис.4.

В данном образце эффект увеличения интенсивности получился значительно более слабым при тех же значениях амплитуды внешнего сигнала. Тем не менее, для него также были проведены эксперименты по регистрации процесса перекачки интенсивности с помощью одновременной регистрации интенсивности на двух детекторах, однако использовалась более высокая амплитуда сигнала. Сравнение полученных результатов представлено на рис.5.

Из полученных данных можно сделать вывод о том, что эффект увеличения интенсивности в кристалле БФК проявляется слабо. Однако большой интерес



Рис.4. Сравнение КДО (1) исходного и КДО (2) возбужденного (U = 105 В) кристалла БФК.



Рис.5. Перераспределение интенсивности в схеме с одновременной регистрацией проходящих (1) и отраженных (2) пучков для кристалла БФК: (a) при выключенном сигнале и (b) при включенном сигнале с амплитудой 105 В.

представляет проведение аналогичных экспериментов с кристаллами со специально подготовленными боковыми гранями, а также с кристаллами меньшей толщины. Такие кристаллы могли бы стать эффективными элементами адаптивной рентгеновской оптики, позволяющими проводить управление интенсивностью рентгеновского пучка, например, в линиях задержки на синхротронных источниках.

4. Заключение

Изучены особенности возбуждения поперечной моды колебаний в кристаллах семейства бифталатов. Последние являются пока еще не широко распространенными, но перспективными кристаллами для создания микроэлектронных компонентов. Вследствие рентгеноакустического перераспределения получено двухкратное увеличение дифрагированного от бифталатов излучения. Показано, что данные кристаллы могут быть использованы для создания адаптивных элементов рентгеновской оптики, основанных на толщинных колебаниях и позволяющих проводить модуляцию интенсивности исследуемого пучка, и, в перспективе, для изготовления комбинированных адаптивных элементов рентгеновской оптики.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках гранта № 075–15–2021–1362 в части разработки методик проведения экспериментов и в рамках госзадания ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН в части синтеза, подготовки и изучения особенностей исследуемых кристаллов.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Zh. Huang, H. Suzuki, M. Ito, Sh. Noguchi. Int. J. Pharm., 625, 122057 (2022).
- 2. O. Karnbach, P.G. Heighway, D. McGonegle, R.E. Rudd, G. Gregori, J.S. Wark. J. Appl. Phys., 130, 125901 (2021).
- 3. Z.-F. Yao, J.-Y. Wang, J. Pei. Progress in Polymer Science, 136, 101626 (2023).
- 4. A. Schropp, R. Hoppe, V. Meier, J. Patommel, F. Seiboth, Y. Ping, D.G. Hicks, M.A. Beckwith, G.W. Collins, A. Higginbotham, J.S. Wark, H. J. Lee, B. Nagler, E.C.

Galtier, B. Arnold, U. Zastrau, J.B. Hastings, Ch.G. Schroer. Sci Rep, 5, 11089 (2015).

- 5. А.Е. Благов, А.Н. Даринский, М.В. Ковальчук, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков, А.В. Таргонский. Акустический журнал, **59**, 561 (2013).
- 6. А.Р. Мкртчян, М.А. Навасардян, Л.А. Кочарян, М.А. Навасардян, О. А. Унанян, Р. Г. Габриелян, Р.П. Вардапетян, В.К. Мирзоян. Известия АН Арм. ССР (серия физическая), 21, 326 (1986).
- Ya. Eliovich, V. Akkuratov, A. Targonskii, A. Blagov, Yu. Pisarevsky, I. Petrov, M. Kovalchuk. Sensors and Actuators A: Physical, 343, 113674 (2022).
- 8. A.R. Mkrtchyan, A.H. Mkrtchyan, V.R. Kocharyan, A.E. Movsisyan, S.B. Dabagov, A.P. Potylicyn. J. Contemp. Physics, 48, 141 (2013).
- 9. А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков. Кристаллография, 53, 411 (2008).
- 10. А.И. Проценко, А.Е. Благов, Ю.В. Писаревский, А.В. Рогачев, А.В. Таргонский, А.Л. Тригуб, Я.А. Элиович, С.Н. Якунин, М.В. Ковальчук. УФН, 191, 88 (2021).
- 11. А.Р. Мкртчян, М.А. Навасардян, Р. Г. Габриелян, Л. А. Кочарян, К. Г. Галоян, А.А. Асланян. Письма в ЖТФ, 9, 1181 (1983).
- 12. Я.А. Элиович, А.Е. Благов, В.Р. Кочарян, А.С. Гоголев, А.В. Таргонский, А.Е. Мовсисян, В.А. Коржов, А.Г.Мкртчян, М.В.Ковальчук. Письма в ЖЭТФ, 115, 170 (2022).
- Y.-X. Kong, Y.-Y. Di, Y. Xu, W.-W. Yang, Zh.-Ch. Tan. J. Chem. Eng. Data, 55, 2185 (2010).
- 14. Y. Okaya. Acta Cryst., 19, 879 (1965).
- 15. R.A. Smith. Acta Cryst., B 31, 2347 (1975).
- 16. A.V. Alex, J. Philip. J. Appl. Phys., 88, 2349 (2000).
- 17. В.К. Мирзоян, А.А. Егиазарян, Э.Г. Багдасарян, П.В. Мирзоян. Известия НАН Армении. Физика, 42, 355 (2007).

POSSIBILITIES OF CREATING X–RAY ACOUSTIC ELEMENTS FROM BIPHTHALATE FAMILY CRYSTALS WITH THICKNESS VIBRATIONS

YA.A. ELIOVICH, V.R. KOCHARYAN, A.E. BLAGOV, A.V. TARGONSKY, V.A. KORZHOV, A.E. MOVSISYAN, A.V. SHAHVERDYAN, A.G. MKRTCHYAN, M.V. KOVALCHUK, S.N. NOREYAN

Peculiarities of X-ray beam diffraction from potassium and rubidium biphthalate piezocrystals under the condition of excitation of transverse ultrasonic vibrations are investigated. Previously, under a similar influence in quartz crystals, the effect of X-ray acoustic redistribution was observed, in which the intensity of diffracted radiation in the exact Bragg position increases significantly with a simultaneous decrease in the intensity of the transmitted beam, down to zero for certain parameters for reflecting atomic planes $(101\overline{1})$, called the full pumping effect. This effect can be used for controlled tuning of the diffracted beam intensity. In this work, in order to search for new materials for the creation of diffracted radiation on the amplitude of the control signal for potassium and rubidium biphthalates crystals. The actual possibility of X-ray intensity modulation using transverse vibrations in these crystals is demonstrated