

УДК 539.165.3:621.36

ПРИМЕНЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ ДЛЯ СОЗДАНИЯ БЕТА–ВОЛЬТАИЧЕСКИХ ГЕНЕРАТОРОВ

© 2016 г. А. С. Быков, М. Д. Малинкович, И. В. Кубасов,
А. М. Кислюк, Д. М. Киселев, С. В. Ксенич, Р. Н. Жуков, А. А. Темиров,
М. В. Чичков, А. А. Полисан, Ю. Н. Пархоменко

*Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»
Ленинский просп., д. 4, Москва, 119049, Россия*

Рассмотрены особенности применения радиоактивных изотопов при создании автономных источников электропитания. Проведен анализ веществ, используемых в радиоизотопных термоэлектрических генераторах. Обоснована перспективность изготовления бета–вольтаических генераторов, представлено сравнение их с другими источниками электрического питания. Рассмотрен механизм β –распада и его место среди других видов ядерных превращений. Сформулированы основные требования по радиационной безопасности, а также требования к применяемым материалам корпуса и преобразователя. Рассмотрены некоторые предложенные ранее конструкции радиоизотопных бета–вольтаических источников. Приведен перечень изотопов, возможных для применения в качестве источника энергии в бета–вольтаическом генераторе. Рассмотрены методы получения радиоактивных материалов, демонстрирующих β –распад, их основные свойства и природные изотопы. Сделан вывод о предпочтительности выбора изотопа никеля–63 для применения в бета–вольтаических генераторах благодаря оптимальному сочетанию времени полураспада, средней энергии частиц и интенсивности излучения.

Ключевые слова: источники питания, бета–вольтаический генератор, радиоактивное излучение, изотопы

Введение

Одной из главных тенденций в хозяйственной деятельности человека в настоящее время является стремление к созданию максимально автономных приборов и устройств. Оно выражается в постепенном переходе к беспроводным технологиям, разработке и внедрении энергетически эффективных решений в электронике и создании новых устройств электропитания [1, 2]. Высокую значимость приобретают приборы и устройства, питание извне и регулярное обслуживание которых затруднительны или невозможны (системы телеметрии для труднодоступных районов планеты и космоса, беспроводные датчики мониторинга состояния строений, имплантируемые медицинские системы и т. п.). В связи с этим активно ведутся исследования и разработки автономных источников питания, способных эффективно и в течение длительного времени вырабатывать и сохранять энергию [3]. Исследования и разработки направлены прежде всего на повышение срока службы и мощности источников питания, а также на создание новых типов

преобразователей, их компоновки, использования разных источников радиоактивного излучения.

Одним из актуальных направлений развития источников питания с длительным сроком службы с момента первого упоминания о возможности получения электрической энергии в процессе ядерного распада [4] являются радиоизотопные генераторы. Эти генераторы в большинстве своем предназначены для питания комплекса радиоэлектронной аппаратуры при работе на объектах, где отсутствуют стандартные источники электроэнергии или применяются повышенные требования к качеству и бесперебойности питания.

В настоящее время для обеспечения бесперебойного питания необслуживаемых, удаленных или космических устройств используют радиоизотопные термоэлектрические генераторы (РИТЭГ). В РИТЭГе теплота, выделяемая при радиоактивном распаде, преобразуется в электричество с помощью термоэлектрического материала или многослойной сборки [5]. В качестве распадающихся веществ в таких устройствах чаще всего используют

Быков Александр Сергеевич — кандидат техн. наук, доцент e-mail: xalex1349@mail.ru; **Малинкович Михаил Давыдович** — кандидат физ.–мат. наук, доцент, e-mail: malinkovich@yandex.ru; **Кубасов Илья Викторович** — ассистент; **Кислюк Александр Михайлович** — магистрант; **Киселев Дмитрий Александрович** — кандидат физ.–мат. наук, старший научный сотрудник; **Ксенич Сергей Владимирович** — инженер; **Жуков Роман Николаевич** — инженер; **Темиров Александр Анатольевич** — ассистент; **Чичков Максим Владимирович** — инженер; **Полисан Андрей Андреевич** — доктор техн. наук, профессор; **Пархоменко Юрий Николаевич** — доктор физ.–мат. наук, профессор.

изотопы ^{148}Gd , ^{210}Po , ^{238}Pu , ^{244}Pu и ^{90}Sr . При этом правильный выбор изотопа позволяет создавать источники питания, пригодные для носимых медицинских устройств. В частности, ^{238}Pu является почти чистым α -излучателем, что делает его одним из самых безопасных радиоактивных изотопов с минимальными требованиями к биологической защите. Так, на основе ^{238}Pu разработаны первые биосовместимые источники питания кардиостимуляторов [6]. В табл. 1 приведены средние значения потребляемой мощности для разного типа имплантатов [7].

Таблица 1

Мощность, потребляемая медицинскими имплантатами [8]
[Power consumption of medical implants]

Тип имплантата	Энергопотребление, мкВт
Кардиостимулятор	30—100
Кардиодефибриллятор	30—100
Нейростимулятор	30— ~1000
Насос для подачи лекарств	100—2000
Кохлеарные имплантаты	10000

Даже с учетом малой мощности радиоизотопные генераторы способны обеспечивать непрерывную работу различных устройств в течение длительного времени. Однако РИТЭГи имеют относительно сложную конструкцию и чрезвычайно низкую эффективность [8]. Кроме того, использование радиоактивных веществ, испускающих при распаде γ -излучение, предъявляет высокие требования к защитному корпусу.

Отдельной задачей является получение радиоактивных изотопов высокой степени изотопной чистоты и заданной удельной активности. Например, ^{238}Pu не встречается в природе, и для его наработки необходимо использовать реакторы-размножители (бридеры). А изотоп ^{90}Sr получают из отработанного топлива ядерных реакторов в больших количествах. Однако он имеет значительный уровень ионизи-

рующего излучения высокой проникаемости, что предъявляет относительно высокие требования к биологической защите.

Перспективным направлением с учетом развития технологий ядерной энергетики является бета-вольтаика. Бета-вольтаический эффект был открыт в 60—70-х годах прошлого столетия, но в последнее время интерес к нему существенно вырос по причине перспективы внедрения в технологию микроэлектромеханических систем (**МЭМС**). Для МЭМС и полупроводниковых приборов нового поколения необходимы миниатюрные источники электрического питания, работающие достаточно продолжительное время и обладающие малыми габаритами.

На рис. 1 представлена сравнительная диаграмма используемых в настоящее время батарей. Из диаграммы видно, что у бета-вольтаических источников питания в настоящее время максимальная длительность срока службы [9].

Преимуществами источников питания на основе радиоактивных изотопов являются длительный срок работы, низкий вес, небольшой размер, широкий рабочий температурный диапазон и высокая надежность. Одно из преимуществ использования бета-вольтаических элементов питания в полупроводниковых МЭМС-устройствах — схожесть технологических производственных процессов. Это позволяет создавать конечный прибор в едином технологическом цикле.

Ниже дан обзор радиоактивных веществ, перспективных для применения в бета-вольтаике.

Источники энергии для бета-вольтаических генераторов

Бета-распад (β -распад) — самопроизвольное превращение ядер, сопровождающееся испусканием (или поглощением) электрона и антинейтрино или позитрона и нейтрино. Известны следующие типы β -распада: электронный распад (превращение нейтрона в протон), позитронный распад (протона в нейтрон) и электронный захват. При электронном β -распаде заряд ядра увеличивается на 1, при позитронном — уменьшается на 1 (правило радиоактивных смещений Содди и Фаянса). Массовое число A при этом не меняется, что приводит к образованию ядер — изобар. К β -распаду относится также спонтанное превращение свободного нейтрона в протон, электрон и антинейтрино. Бета-излучение — корпускулярное излучение с непрерывным энергетическим спектром, состоящее из отрицательно или положительно заряженных электронов или позитронов (β^- - или β^+ -частиц) и возникающее при радиоактивном β -распаде ядер или нестабильных частиц. Харак-

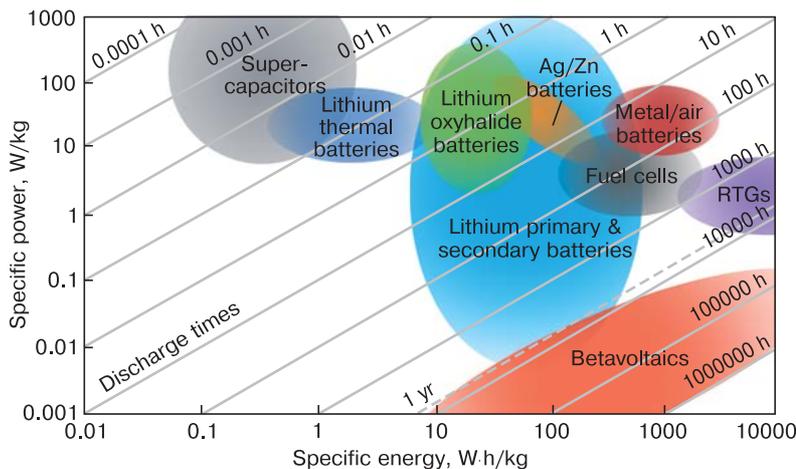


Рис. 1. Сравнительная диаграмма элементов питания [9]
Fig. 1. Comparative diagram of supply elements [9]

теризуется граничной энергией спектра E_β , т. е. максимальной энергией испущенных при распаде β -частиц.

В отличие от α -распада, который возможен лишь для ядер с $A > 140$ ($Z > 60$), ядра, испытывающие β -распад, расположены по всей Периодической системе элементов. Определим области значений A и Z ядер, имеющих тот или иной тип β -активности. Для этого используем полуэмпирическую формулу Вайцзеккера для энергий связи ядер, которая неоднократно подтверждалась на практике [10]:

$$E_{\text{св}} = \alpha_1 A - \alpha_2 A^{2/3} - \alpha_3 \frac{Z^2}{A^{1/3}} - \alpha_4 \frac{(A - 2Z)^2}{A} + \alpha_5(A, Z), \quad (1)$$

где $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha_4, \alpha_5$ — константы, которые соответствуют наилучшему описанию экспериментальных данных; Z — заряд ядра.

В соотношении (1) первый член представляет собой объемную энергию ядра, второй — поверхностную, третий — кулоновскую. Четвертый член отражает свойство симметрии n – p -взаимодействий. Пятый — учитывает эффект четности числа нуклонов каждого сорта. Массовое число A при β -распаде не изменяется, в то время как Z изменяется на 1. Поэтому первые два члена в формуле не влияют на β -распад, равно как и последний член тоже не является существенным. Наиболее важны для β -распада третий и четвертый члены. Тогда равновесное число протонов и нейтронов в ядре (при фиксированном A) определяется минимумом по Z суммы третьего и четвертого членов. Для этого случая эмпирические коэффициенты α_3 и α_4 составляют 0,70 и 23,7 МэВ соответственно. Легко показать, что этот минимум имеет место при

$$Z_{\text{равн}} = \frac{2\alpha_4 A}{\alpha_3 A^{2/3} + 4\alpha_4} \approx \frac{A}{0,015A^{2/3} + 2}. \quad (2)$$

Анализ формулы (2) показал, что при $Z < Z_{\text{равн}}$ ядро испытывает β^- -распад, а при $Z > Z_{\text{равн}}$ — β^+ -распад и электронный захват. При всех A β -стабильные ядра должны группироваться вокруг значений $Z_{\text{равн}}$ (рис. 2). При малых A выполняется $Z_{\text{равн}} \approx A/2$, т. е. легкие ядра должны иметь примерно одинаковое количество протонов и нейтронов (роль кулоновской энергии мала). С ростом A роль кулоновской энергии увеличивается, и количество нейтронов в устойчивых ядрах начинает превышать количество протонов [11].

В результате всех типов β -распада ядро-продукт может образоваться как в основном, так и в возбужденном состоянии, которое распадается с излучением γ -квантов относительно большой энергии, достигающей 2—2,5 МэВ.

Тип распада конкретного изотопа будет определяться при заданном значении Z количеством нейтронов в его ядре. Нейтронно-избыточные ядра (т. е. такие ядра, количество нейтронов в которых больше, чем требуется для их стабильности) испытывают β^- -распад, который для них энергетически выгоден. Количество нейтронов в ядре-продукте распада при этом уменьшается, а число протонов увеличивается, увеличивая энергию связи в ядре и приближая их к области стабильности. Для нейтронно-дефицитных ядер, вероятно, будет более выгоден β^+ -распад, для нейтронно-избыточных — β^- -распад и электронный захват (см. рис. 2). Таким образом, в процессах распада изотопы одного и того же элемента при изменении их массового числа и, следовательно, количества нейтронов проявляют совершенно различные свойства.

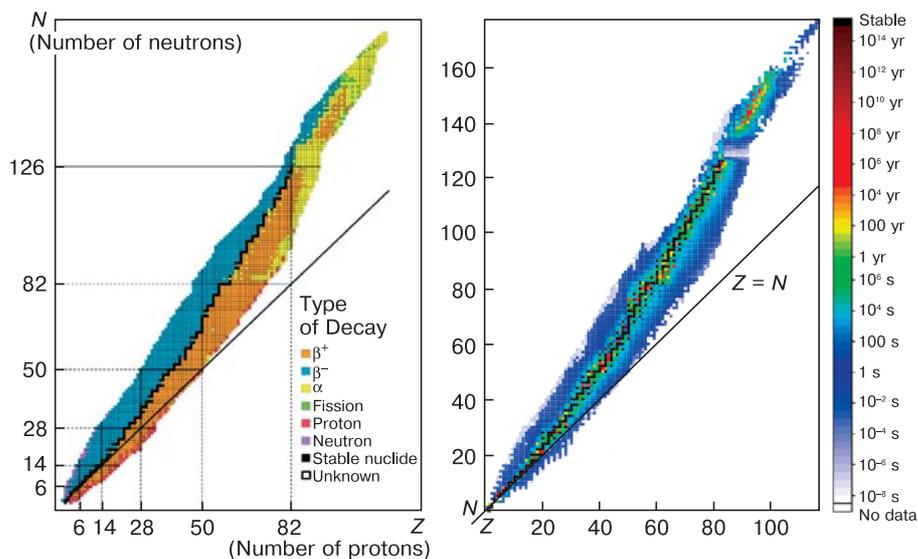


Рис. 2. N – Z -диаграммы атомных ядер по типу распада и стабильности изотопа
Fig. 2. N – Z -diagram of atomic nuclei by decay type and isotope stability

Полная энергия E , выделяющаяся при β -распаде, перераспределяется главным образом между двумя вылетающими из ядра частицами. Только очень малая ее часть ($\sim E^2/(Mc^2)^2$, где M — масса заряда) передается при отдаче ядру-продукту распада. В отличие от случая α -распада, спектр вылетающих заряженных частиц (электронов или позитронов) при β -распаде непрерывен и занимает широкую область энергий от нулевой до некоторой граничной $E_{\text{гр}}$. Последняя приблизительно определяется разностью масс распадающегося ядра и ядра-продукта распада. Значение граничной энергии β -частиц может изменяться в широких пределах: от 2,64 кэВ (при распаде ^{187}Re) до 13,43 МэВ (при распаде ^{12}B). Средняя энергия электронов и позитронов распада обычно близка

к 1/3 от максимальной и в большинстве случаев заключена в пределах 0,2—0,5 МэВ. Для β -распада, как и для α -распада, существует довольно резкая зависимость между выделяемой ядром энергией и постоянной распада (при $E_{\text{гр}} \gg m_e c^2$ вероятность распада $\sim E_{\text{гр}}^5$).

В силу относительно малой массы электронов длина их пробега в веществе существенно больше, чем у α -частиц, и при характерной энергии ~ 1 МэВ для Al, например, составляет $\sim 0,15$ см. Длина пробега позитронов значительно меньше, поскольку они быстро захватываются электронами вещества с образованием связанной системы ($e^- + e^+$) — позитрония. Позитроний в течение короткого време-

ни ($\sim 10^{-10}$ с для парапозитрония, в котором спины обеих частиц направлены антипараллельно, и $\sim 10^{-7}$ с для ортопозитрония, в котором спины ориентированы параллельно) аннигилирует с испусканием нескольких γ -квантов. Парапозитроний аннигилирует с излучением двух γ -квантов, разлетающихся в силу закона сохранения импульса строго в противоположные стороны. А ортопозитроний (с вероятностью более чем на два порядка меньше) аннигилирует с испусканием трех γ -квантов. Таким образом, вещество, окружающее β^+ -активные изотопы, испускающие при распаде позитрон, часто является источником монохроматического γ -излучения с энергией 0,511 МэВ, которая соответствует энергии массы покоя электрона (позитрона) [11].

Для малых импульсов распределение электронов в зависимости от их энергии $N_e(E_e)$ имеет вид параболы, обращается в нуль на обоих пределах и имеет максимум посередине. Для исследования энергетического спектра в реальных условиях должны быть учтены действующие на электрон кулоновские силы (особенно для β -частиц малых энергий, испускаемых ядрами с большими Z). Экспериментально измеренный β -спектр удобно анализировать с помощью функции Ферми—Кюри. Графически эта функция для разрешенных β -переходов представляет прямую линию, пересекающую ось энергий E_e в точке $E_e = E_\beta$. Выражение для функции Ферми—Кюри имеет вид

$$Y(E_e, E_\beta) = \left(\frac{N_e(E_e)}{c p_e (E_e + m_e c^2) F(E_e, Z)} \right)^{1/2}, \quad (3)$$

где $F(E_e, Z)$ — кулоновская поправка; p_e — импульс электрона; m_e — масса электрона.

Для некоторых типов β -распада с очень высокими энергиями, согласно теории сохраняющегося векторного тока в области верхнего предела энергии, могут наблюдаться отклонения от линейной зависимости [12]. На рис. 3 представлен энергетический спектр трития и его график Ферми—Кюри [13, 14].

Образование β -частиц в процессе распада материнского ядра возможно как с образованием стабильного дочернего ядра, так и радиоактивного, которое, в свою очередь, будет претерпевать серию распадов (цепочка распадов) до образования стабильного в соответствии с радиоактивным рядом изотопа.

Радиационная безопасность, выбор изотопов и принципы создания бета-вольтаических генераторов

В случае использования бета-вольтаических генераторов в качестве источников питания для бытовых или носимых электронных устройств, а также для повышения безопасности их обслуживания необходимо обеспечить защиту персонала в соответствии с действующими нормами. Основной

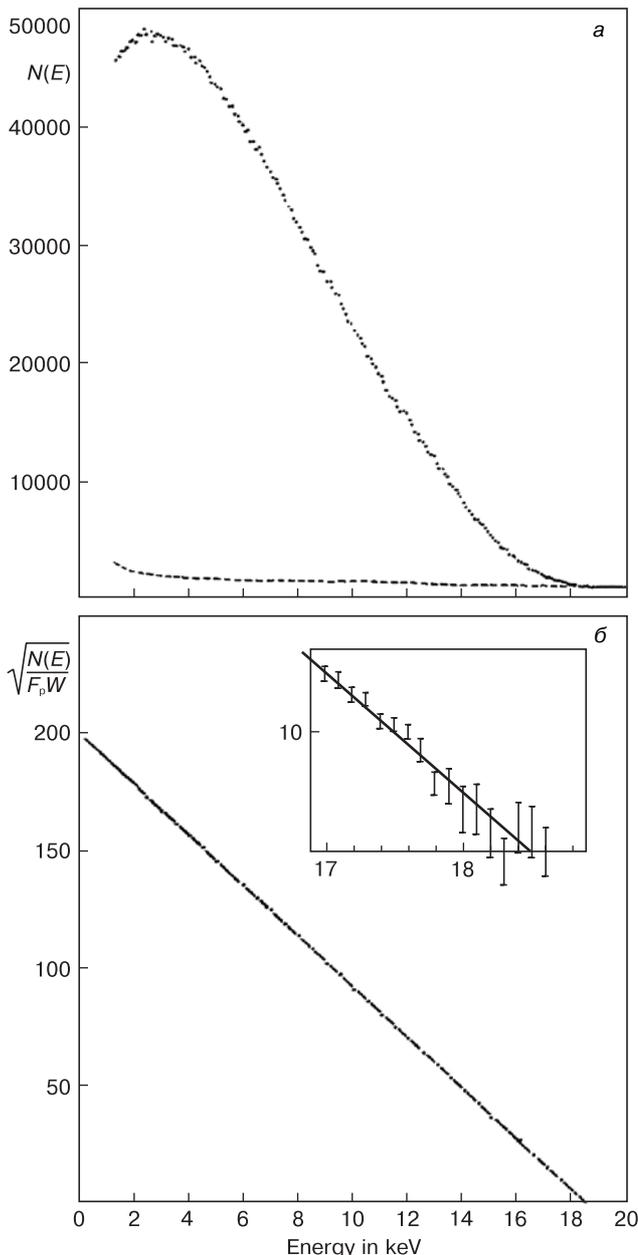


Рис. 3. Энергетический β^- -спектр трития (а) и его график Ферми—Кюри (б) [13, 14]

Fig. 3. (a) β^- energy spectrum and (b) Fermi—Curie curve of tritium [13, 14]

проблемой при использовании ядерных генераторов является наличие γ -излучения высокой интенсивности, предельная безопасная экспозиционная доза которого составляет 20 мкР/ч ($\sim 0,2$ мкЗв/ч).

В работах [15, 16] были сформулированы и обобщены следующие требования к радиоизотопному источнику бета-вольтаического преобразователя:

– источник β -излучения должен находиться в относительно инертной форме и при разрушении герметичного корпуса преобразователя не должен оказывать существенного воздействия на здоровье. Также источник должен иметь относительно низкий выход γ -излучения в случае невозможности использования громоздкой системы ослабляющих экранов;

– источник β -излучения должен иметь период полураспада, соизмеримый со сроком службы генератора, и энергию частиц существенно выше энергии, затрачиваемой на эмиссию из материала и преодоление барьерного слоя диэлектрика;

– при очень высоких энергиях β -частиц наблюдается генерация тормозного излучения, что, по-видимому, негативно скажется на возможности бытового использования.

Продолжительность жизни радиоактивных изотопов характеризуют периодом полураспада ($T_{1/2}$) — промежутком времени, в течение которого число радиоактивных ядер уменьшается вдвое. Значение периода полураспада для разных изотопов может изменяться в очень широких пределах — от 10^{-7} с и менее (^{212}Po , ^{213}At , ^{217}Ac и др.) до более чем 10^{17} лет (например, ^{82}Se , ^{153}Dy , ^{204}Pb). В соответствии с этим, все радиоактивные изотопы принято делить на две группы — короткоживущие ($T_{1/2} < 10$ сут.) и долгоживущие ($T_{1/2} > 10$ сут.).

Существенным свойством радиоактивности является тот факт, что для ядра, находящегося в определенном энергетическом состоянии, вероятность распада в единицу времени постоянна. Это приводит к экспоненциальному закону уменьшения среднего числа радиоактивных ядер $N_{\text{я}}$ с течением времени:

$$N_{\text{я}} = N_0 \exp(-\lambda t), \quad (4)$$

где N_0 — число радиоактивных ядер при $t = 0$; λ — постоянная времени распада, характеризующая вероятность распада одного атома в единицу времени. Соотношением $\lambda = 0,692/T_{1/2}$ постоянная времени распада связана с периодом полураспада.

Другой характеристикой радиоактивных процессов является активность W , которую можно определить по формуле

$$W = \frac{dN_{\text{я}}}{dt} = \lambda N_{\text{я}} = \frac{0,692}{T_{1/2}} N_{\text{я}}. \quad (5)$$

В системе СИ единицей активности служит Беккерель (Бк), равный активности нуклида, при

Радиоактивные изотопы, применяемые в качестве β^- -источников [11]
[Radiocative isotopes use as β^- -sources]

Изотоп	Период полураспада, год	Энергия распада, кэВ
T	12,33	18,6
^{14}C	5730	158
^{63}Ni	100	66
^{90}Sr	28,8	546
^{147}Pm	2,62	224
^{151}Sm	90	76
^{204}Tl	3,78	736 + 348 (e)

которой за 1 с происходит один акт распада. Однако чаще активность традиционно измеряют во внесистемных единицах — Кюри (Ки): 1 Ки равен числу радиоактивных распадов в 1 с в 1 г радия (1 Ки = $3,7 \cdot 10^{10}$ Бк). В табл. 2 приведены радиоактивные изотопы, применяемые в качестве β^- -источников в бета-вольтаических генераторах [11].

Предпринимались попытки создания преобразователей по типу прямого преобразования по схеме диода Шоттки на основе жидких полупроводников с использованием изотопов ^{35}S , нарабатываемых из KCl-мишеней в ходе реакции $^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$. Изотопы ^{35}S распадается по β^- -каналу с образованием ста-

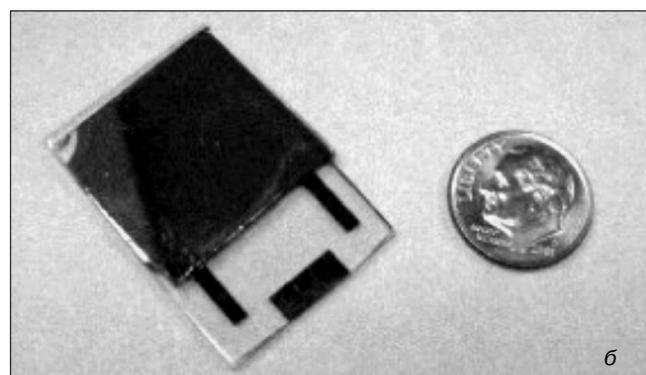
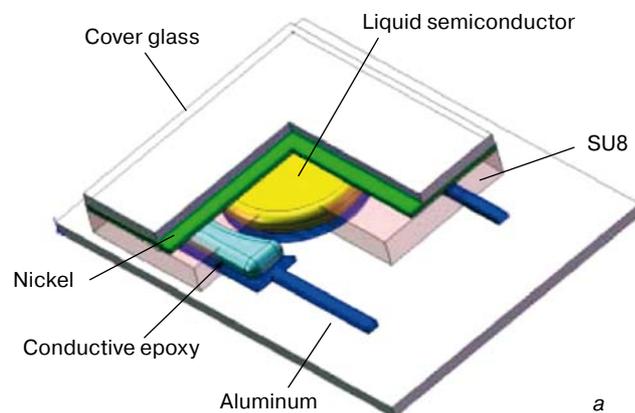


Рис. 4. Схема (а) и внешний вид (б) бета-вольтаического генератора на основе ^{35}S [19]

Fig. 4. (a) schematic and (b) appearance of ^{35}S base betavoltaic generator [19]

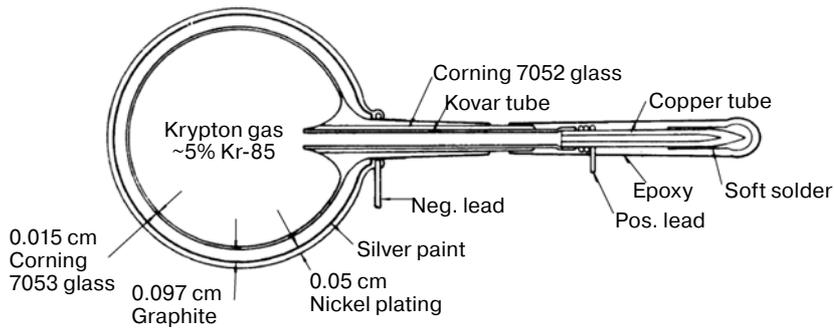
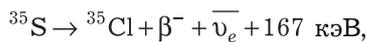


Рис. 5. Бета-вольтаический генератор Sandia Corporation на основе ^{85}Kr [15]
Fig. 5. Sandia Corporation's ^{85}Kr base betavoltaic generator [15]

бильного изотопа ^{35}S и испусканием β -частицы с максимальной энергией порядка 167 кэВ [17]:



где β^- — β -частица; $\bar{\nu}_e$ — антинейтрино.

Однако период полураспада ^{35}S составляет 87,3 сут. [18], поэтому подобные источники не получили широкого распространения и их использовали для исследовательских целей. На рис. 4 представлена схема и внешний вид бета-вольтаического генератора на основе ^{35}S [19]. Выходная мощность устройства составила 16,2 нВт, напряжение холостого хода — 899 мВ, ток короткого замыкания — 0,107 мкА при активности ^{35}S порядка 150 мКи [19, 20].

Широкого распространения в качестве энергетического материала не получил и изотоп ^{85}Kr [21], являющийся побочным продуктом распада ^{235}U с периодом полураспада 10,76 года и образованием стабильного изотопа ^{85}Rb . Средняя энергия β -частицы с вероятностью 99,56 % составляет 249 кэВ, в осталь-

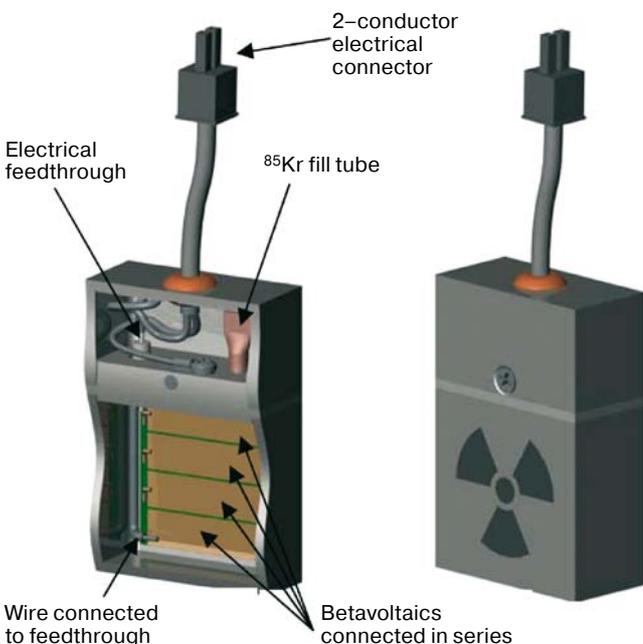


Рис. 6. Бета-вольтаический генератор QynCell [23]
Fig. 6. QynCell betavoltaic generator [23]

ных случаях испускаются β -частица с максимальной энергией порядка 173 кэВ и γ -квант с энергией 514 кэВ [22]:



На основе изотопа ^{85}Kr компания Sandia Corporation (США) мелкосерийно производила генераторы. Схема такого генератора представлена на рис. 5. Изотоп в генераторе имел активность ~0,8 Ки и позволял утилизировать ~30 % эмитировавших β -частиц. Это давало возможность достигать значений

напряжения холостого хода и тока короткого замыкания порядка 20 кВ и 10^{-9} А соответственно [15].

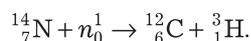
Также на основе ^{85}Kr и ^{147}Pm компанией Qynergy Corporation (США) производились бета-вольтаические генераторы QynCell. В качестве преобразователя использовали SiC. Источник мощностью 1,2 Ки и удельной активностью $4,44 \cdot 10^{10}$ Бк/с позволял получить 50 мкВт полезной мощности с КПД, равным 0,75—1,15 % (рис. 6) [23].

Получение и свойства изотопов для бета-вольтаических генераторов

Тритий. Водород в природе встречается в виде трех изотопов: протия — $^1\text{H}_1$, дейтерия (тяжелый водород) — $^2\text{H}_1$ (D) и трития — $^3\text{H}_1$ (T). Протий и дейтерий стабильны, тритий радиоактивен. Имеются сведения о существовании еще четырех изотопов водорода, которые очень нестабильны [24]. Изотоп $^4\text{H}_1$ быстро превращается в тритий с выделением нейтрона, а $^5\text{H}_1$ распадается с периодом полураспада 10^{-1} с и испускает β -частицы. В свободном состоянии водород существует в виде двухатомной молекулы, которая имеет общую электронную оболочку. Поэтому в смеси изотопов водорода обнаруживаются молекулы H_2 , D_2 , T_2 , HD, HT, DT. Свойства трития приведены ниже.

Тип распада	β^- (100%)
Период полураспада	12,323 года
Константа распада ($\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$)	$1,782 \cdot 10^{-10} \text{ с}^{-1}$
Максимальная энергия β -частицы	18,582 кэВ
Средняя энергия β -частицы	5,685 кэВ
Генерируемая теплота	0,324 Вт/г = = 1,954 Вт/моль T_2
Энергия ионизации $\text{T} \rightarrow \text{T}^+ + e^-$	13,595 эВ
Энергия диссоциации $\text{T}_2 \rightarrow 2\text{T}$	4,591 эВ
Активность на грамм	355,7 ТБк (9615 Ки)
Активность на моль T_2	2146 ТБк (58,00 кКи)
Активность в 1 см ³	88,1 ГБк (2,38 Ки)
при нормальных условиях	
Активность 1 г T_2O	97,42 ТБк (2633 Ки)
Активность 1 г DTO	51,0 ТБк (1379 Ки)
Активность 1 г НТО	53,6 ТБк (1449 Ки)

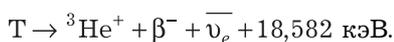
Впервые об обнаружении изотопа ^3H было заявлено в 1933 г. [25]. В естественном водороде содержание трития составляет ~ 1 ат. Т на 10^{18} ат. Н. Впоследствии эта величина получила название «трیتیевая единица» (**TE**). Концентрация природного трития на водной поверхности океана составляет в среднем 0,11 Бк/л [26]; она различна в зависимости от географического расположения. Природный тритий образуется при воздействии нейтронов космического излучения из ядер ^{14}N по реакции $^{14}\text{N}(n,t)^{12}\text{C}$:



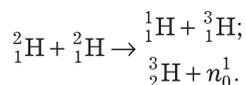
Эффективное сечение реакции составляет ~ 20 мбарн [27].

Максимальный пробег β -частиц трития R_m в воздухе составляет $\sim 5,7$ мм, средний порядка 0,8—0,9 мм.

Тритий распадается по β^- -каналу с периодом полураспада $\sim 12,33$ года [28] с образованием стабильного изотопа ^3He , испусканием β^- -частицы и антинейтринно относительно низкой энергии [29]:

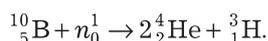
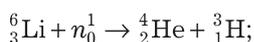
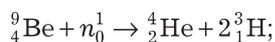


В лабораторных условиях тритий впервые был получен при бомбардировке дейтронами мишеней, содержащих дейтерий, по ядерной реакции $\text{D}(d,p)\text{T}$ [30]:



Атомные массы T и ^3He составили 3,0151 и 3,0163 соответственно.

Вскоре тритий был получен при бомбардировке нейтронами изотопов ^9Be , ^6Li и ^{10}B в результате ядерных реакций $^9\text{Be}(n,t)^7\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$, $^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$, $^{10}\text{B}(n,\alpha\alpha)\text{T}$:



Наиболее перспективным источником получения трития является использование бридеров мощностью 1 ГВт. В бридерах 100 % выделяемой мощности поглощается бланкетом (blanket) на основе Li_2BeF_4 , $\text{Li}_{0,17}\text{Pb}_{0,83}$ [31], Li_4SiO_4 , Li_2TiO_3 и LiAlO_2 [32]. Бланкет имеет толщину ~ 40 — 60 см и окружает активную зону ядерного реактора. В зависимости от типа реактора наработка идет по реакциям $^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ и $^7\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$.

Эффективное сечение для реакции $^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ ($\sigma_{\text{th}} = 940$ барн), используемой в настоящее время для промышленного получения трития, значительно больше, чем для $^7\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ ($\sigma_{\text{avg}} = 20$ мбарн), в которой вероятность рассеяния нейтрона гораздо больше

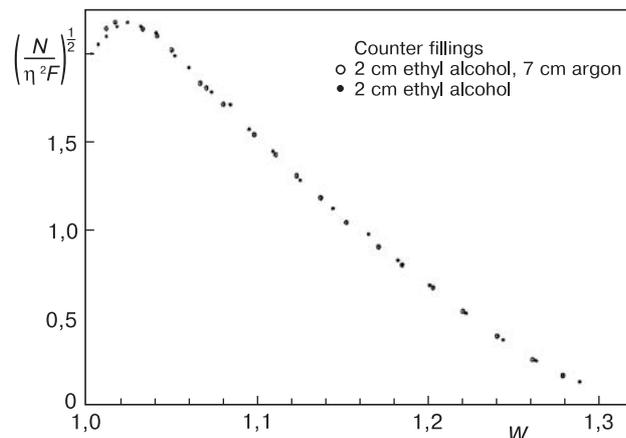
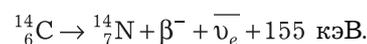


Рис. 7. График Ферми—Кюри ^{63}Ni [34]
Fig. 7. ^{63}Ni Fermi—Curie curve [34]

вероятности его поглощения ядром. Однако в ходе реакции $^7\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ не уменьшается общее число нейтронов, что благоприятным образом сказывается на применении подобных бланкетов в ДТ-ядерных реакторах [31]. В среднем реактор мощностью 3 ГВт способен наработать порядка 5—8 кг Т в год [32].

Изотоп ^{14}C . Известно о 14 изотопах углерода. В природе встречаются два стабильных изотопа ^{12}C и ^{13}C и один радиоактивный ^{14}C [24].

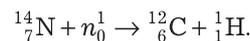
Изотоп ^{14}C распадается по β^- -каналу с периодом полураспада ~ 5700 лет [33] с образованием стабильного изотопа ^{14}N :



На рис. 7 представлен график Ферми—Кюри для изотопа ^{14}C [34]. Свойства ^{14}C представлены ниже [33].

Тип распада	β^- (100%)
Период полураспада	5700 лет
Максимальная энергия β^- -частицы	0,155 МэВ
Средняя энергия β^- -частицы	40,495 кэВ
Энергия ионизации $\text{T} \rightarrow \text{T}^+ + e^-$	13,595 эВ
Энергия диссоциации $\text{T}_2 \rightarrow 2\text{T}$	4,591 эВ
Активность на грамм	$2 \cdot 10^{15}$ Бк (54 кКи)

В природе ^{14}C образуется главным образом в верхних слоях атмосферы при взаимодействии нейтронов космического излучения с ^{14}N по реакции $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ [35]:



Эффективное сечение реакции составляет $\sim 1,83$ барн [36]. Суммарная активность природного изотопа ^{14}C — $\sim 1,5 \cdot 10^{15}$ Бк/год. По данным на 1998 г., активность изотопа, произведенного в результате ядерных реакций и как побочный продукт атомных станций, составляет $\sim 1,1 \cdot 10^{15}$ Бк/год.

Химический состав содержащих изотопы ^{14}C соединений в выбросах ядерных реакторов зависит от типа последних:

– в выбросах реакторов типа BWR ^{14}C находится в форме CO_2 (95 %), CO (2,5 %) и в виде гидрокарбонатов;

– в выбросах реакторов типа PWR — CH_4 и C_2H_6 (80 %), CO_2 и CO (5 %);

– в реакторах типа РБМК ^{14}C выделяется как побочный продукт при облучении N—He—смеси системы гелиевого заполнения реактора [37], активность оценивается в 10^{11} Бк/(МВт · г).

Наиболее высокий нормализованный выброс у реакторов на тяжелой воде (**НВР**) — $(1,0–1,7) \times 10^{13}$ Бк/(ГВт · г), а наименьший у реакторов типа PWR и BWR — $2,5 \cdot 10^{11}$ Бк/(ГВт · г) [38].

В качестве материала для получения ^{14}C в нейтронном потоке в бридерах используют $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$, AlN или NH_4NO_3 .

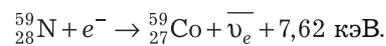
Максимальный пробег β -частиц R_m в воздухе составляет ~20 см. Энергия β -частиц довольно низкая, вследствие чего не требуется использование дополнительной защиты рабочего персонала, так как излучение полностью останавливается кожей. Лишь в случае использования больших объемов изотопа наблюдается появление тормозного излучения.

Обогащение изотопа ^{14}C в основном производят химическими методами, однако для наработки

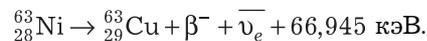
лабораторных объемов изотопа или для проведения высокоточного радиоуглеродного анализа могут применять метод лазерного обогащения [39].

Как правило, $^{14}\text{CO}_2$, образующийся в результате реакции, адсорбируется при помощи водного раствора NaOH и $\text{Ba}(\text{OH})_2$ с образованием $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$. Это является стандартной химической формой для хранения или дальнейшего использования для приготовления продуктов на основе ^{14}C . Изотопная чистота $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ обычно находится в пределах 80–90 %, средняя удельная активность при этом составляет ~50–56 Ки/моль [40].

Изотоп ^{63}Ni . Никель в природе встречается в виде пяти стабильных изотопов ^{58}Ni , ^{60}Ni , ^{61}Ni , ^{62}Ni и ^{64}Ni и 27 радиоактивных [41], из которых лишь 2 долгоживущих: ^{59}Ni (электронный захват с вероятностью ~100 %, $T_{1/2} = 76000$ лет [42], испускает характеристическое рентгеновское излучение энергией ~7 кэВ [43]) и ^{63}Ni (β^- -распад):



Изотоп ^{63}Ni распадается по β^- -каналу с периодом полураспада ~101,2 года с образованием стабильного изотопа ^{63}Cu , испусканием β^- -частицы и антинейтрино с достаточно низкой максимальной энергией [44], что делает возможным применение данного изотопа без использования массивных поглощающих экранов.



На рис. 8 представлен энергетический β^- -спектр [45] и график Ферми—Кюри ^{63}Ni [46]. Свойства изотопа ^{63}Ni представлены ниже [44, 47].

Тип распада	β^- (100 %)
Период полураспада	101,2 года
Максимальная энергия	
β^- -частицы	66,945 кэВ
Средняя энергия β^- -частицы	17,13 кэВ
Активность на 1 г	2,113 ТБк (57,108 Ки)
Мощность на 1 ТБк	2,744 мкВт

Форма β^- -спектра и максимальная энергия β^- -частицы ^{63}Ni зависят от формы и толщины эмитирующего образца, так как в реальном образце часть энергии затрачивается на образование дефектов и метастабильных состояний, смещая энергетический максимум в сторону низких энергий [48].

В общем случае поверхностную активность можно оценить по формуле

$$A = A_\infty (1 - e^{-\mu x}), \quad (6)$$

где A — измеренная активность; A_∞ — эмпирическая константа, характеризующая «насыщенность» рас-

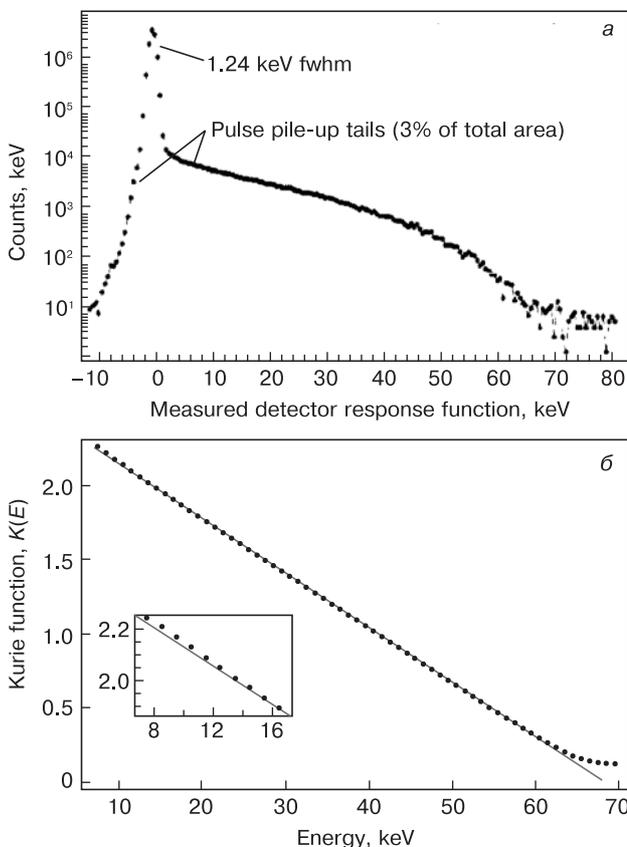


Рис. 8. Энергетический β^- -спектр [45] (а) и график Ферми—Кюри ^{63}Ni [46] (б)

Fig. 8. (a) β^- energy spectrum and (б) Fermi—Curie curve of ^{63}Ni [46]

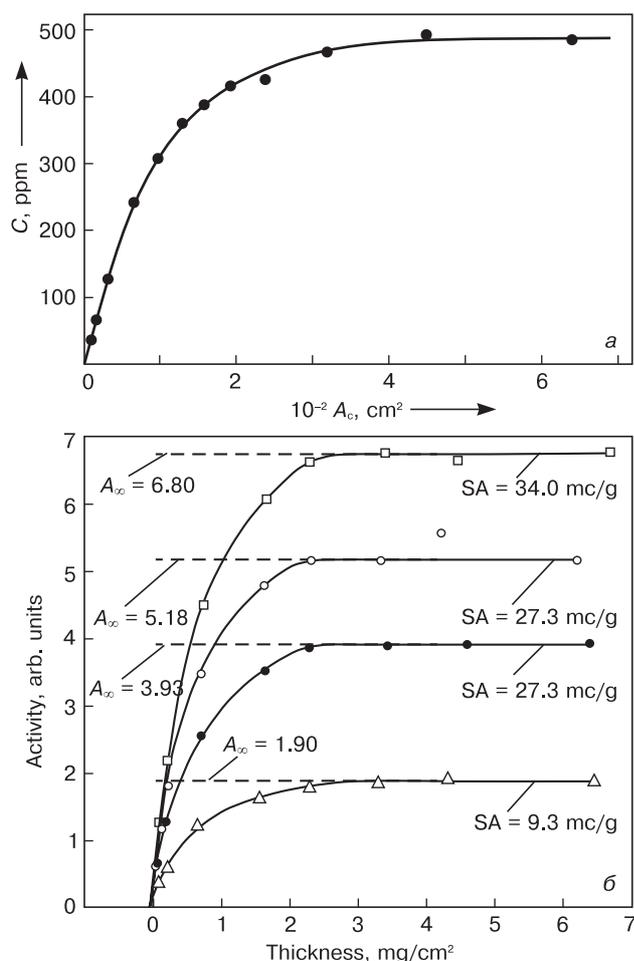


Рис. 9. Зависимости активности пленки ^{63}Ni от толщины пленки (а) и удельной активности раствора (б) [49, 50]

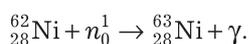
Fig. 9. ^{63}Ni film activity as a function of (a) film thickness and (b) unit activity of solution [49, 50]

твора (величина активности полубесконечного образца); x — толщина слоя ^{63}Ni , $\text{мг}/\text{см}^2$; μ — коэффициент поглощения, $\text{см}^2/\text{мг}$.

На рис. 9 представлены графики зависимости активности пленок ^{63}Ni , осажденных из водных растворов $^{63}\text{NiCl}_2$ с разной удельной активностью методом гальванического осаждения на Pt-электрод [49, 50].

Значение коэффициента поглощения, по разным данным, лежит в интервале $1,56\text{—}1,6\text{ см}^2/\text{мг}$ [49].

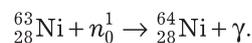
Наработка ^{63}Ni производится по реакции $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ [52]:



Эффективное сечение реакции $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ составляет $\sim 14,5$ барн [51—53]. Довольно большой объем ^{63}Ni образуется в результате облучения стального корпуса реактора и компонентов системы охлаждения, которые изготавливают с использованием нержавеющей сталей, содержащих до 20 % Ni [43].

Промышленная наработка изотопа ^{63}Ni производится из металлических мишеней ^{62}Ni с обогаще-

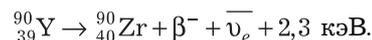
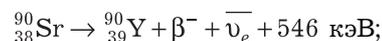
нием $\sim 99\%$. Неблагоприятным фактором является тот факт, что в ходе проведения процесса наработки изотоп ^{63}Ni переходит в изотоп ^{64}Ni по реакции $^{63}\text{Ni}(n,\gamma)^{64}\text{Ni}$:



Эффективное сечение реакции $^{63}\text{Ni}(n,\gamma)^{64}\text{Ni}$ составляет ~ 24 барн [51]. Исходя из этого, график соотношения изотопов при наработке $^{62}\text{Ni}/^{63}\text{Ni}$ имеет максимум при времени облучения мишени $0,8\text{—}1,5$ года, так как дальнейшая выдержка мишени в бридере приводит к образованию значительного объема ^{64}Ni . Для наработки $280\text{—}320$ Ки ^{63}Ni время облучения составляет $\sim 3500\text{—}4000$ ч. На рис. 10 представлена схема технологического цикла производства изотопа ^{63}Ni . Изотопная чистота продукта после разделения — $80\text{—}90\%$ [54].

Изотоп ^{90}Sr . Стронций (Sr) имеет 35 изотопов. Стабильными являются четыре ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{87}Sr , ^{88}Sr . Долгоживущий — только один ^{90}Sr (β^- -распад с вероятностью $\sim 100\%$, $T_{1/2} = 28,79$ года) [55].

Изотоп ^{90}Sr распадается по β^- -каналу с периодом полураспада $\sim 28,79$ года с испусканием β^- -частицы и антинейтрино с максимальной энергией 546 кэВ и образованием нестабильного изотопа ^{90}Y , который, в свою очередь, распадается по β^- -каналу с периодом полураспада ~ 64 ч с испусканием β^- -частицы с энергией $\sim 2,3$ МэВ и образованием стабильного изотопа ^{90}Zr [56]:



Основной источник получения изотопа ^{90}Sr — переработка отработанного ядерного топлива (U и Pu) с использованием методов экстракции и ионного обмена, где ^{90}Sr является одним из дочерних продуктов распада [57].

В виде ^{90}SrO и $^{90}\text{SrTiO}_3$ изотоп ^{90}Sr активно применяется для создания нагревательных элементов РИТЭГов.

Высокоэнергетические β^- -частицы значительно снижают выходные параметры полупроводниковых преобразователей, так как в процессе работы создается большое число радиационных дефектов [58, 59].

Дополнительным препятствием для использования ^{90}Sr в качестве энергетического материала в переносных портативных устройствах является значительный уровень тормозного излучения [60].

Изотоп ^{147}Pm . Прометий (Pm) не имеет стабильных изотопов и в природе встречается лишь в виде дочерних продуктов распада. Прометий имеет 31 изотоп, из которых долгоживущими являются следующие:

— ^{143}Pm и ^{144}Pm (β^+ -распад, $T_{1/2} = 265$ и 363 дня соответственно);

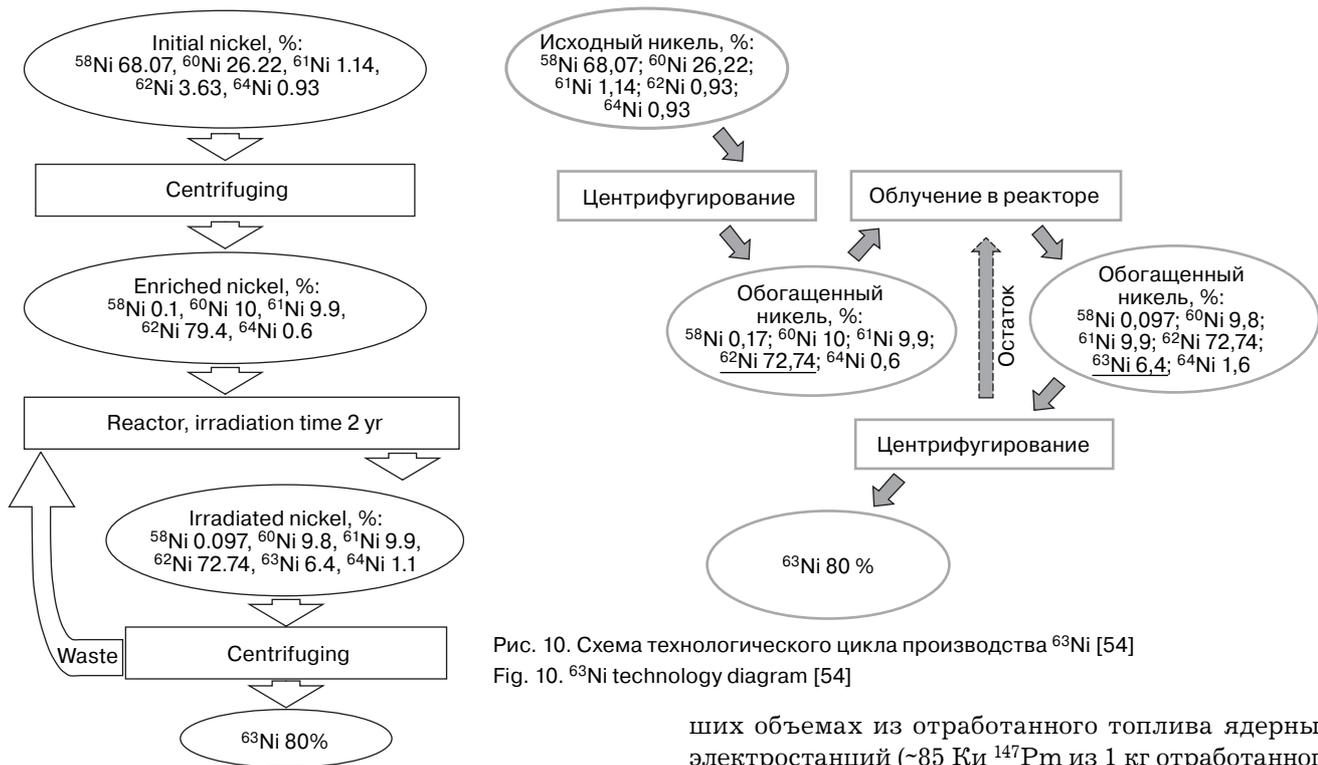
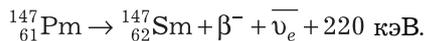


Рис. 10. Схема технологического цикла производства ⁶³Ni [54]
Fig. 10. ⁶³Ni technology diagram [54]

- ¹⁴⁵Pm (электронный захват с вероятностью ~100 %, T_{1/2} = 17,7 года);
- ¹⁴⁶Pm (β⁻-распад с вероятностью 34 %, электронный захват с вероятностью 66 %, T_{1/2} = 5,53 года);
- ¹⁴⁷Pm (β⁻-распад с вероятностью ~ 100 %, T_{1/2} = 2,62 года) [61].



Изотоп ¹⁴⁷Pm распадается по β⁻-каналу с периодом полураспада ~2,62 года с образованием стабильного изотопа ¹⁴⁷Sm, испусканием β-частицы и антинейтрино с максимальной энергией 220 кэВ. Также при распаде с вероятностью ~2,85 · 10⁻³ % образуется γ-квант с энергией 121 кэВ, что предъявляет дополнительные требования к защите от облучения. Так, при работе с источником ¹⁴⁷Pm с активностью 76,7 Ки персоналу необходимо использовать свинцовые экраны толщиной ~8 см [62].

На рис. 11 представлен энергетический β⁻-спектр ¹⁴⁷Pm [59] и график Ферми—Кюри [34]. Ниже приведены основные свойства изотопа ¹⁴⁷Pm.

Тип распада	β ⁻ (100 %)
Период полураспада	2,62 года
Максимальная энергия β-частицы.....	220 кэВ
Средняя энергия β-частицы.....	62 кэВ
Активность на 1 г.....	36,26 ТБк (980 Ки)

Изотоп ¹⁴⁷Pm является продуктом распада ²³⁵U [63], что позволяет получать его в достаточно боль-

ших объемах из отработанного топлива ядерных электростанций (~85 Ки ¹⁴⁷Pm из 1 кг отработанного топлива ²³⁵U).

Также ¹⁴⁷Pm может быть наработан по ядерной реакции ¹⁴⁶Nd(n,γ)¹⁴⁷Nd(β⁻)¹⁴⁷Pm. Нароботка составляет ~10 Ки ¹⁴⁷Pm при облучении в потоке нейтронов 100 г мишени Nd в течение 240 сут. [64]. Разделение и

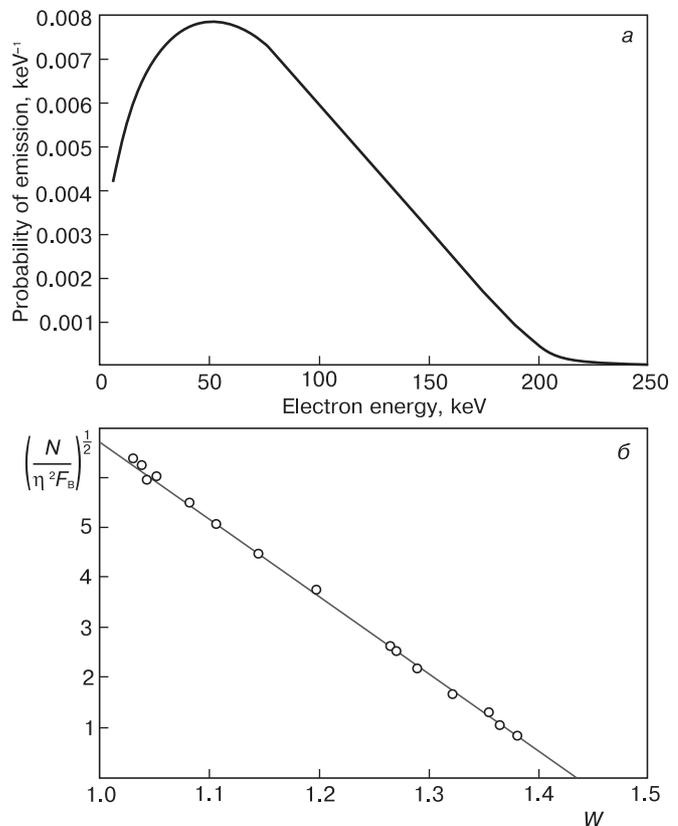


Рис. 11. Энергетический β⁻-спектр [59] (а) и график Ферми—Кюри [34] ¹⁴⁷Pm (б)
Fig. 11. ¹⁴⁷Pm β energy spectrum [59] and Fermi—Curie curve [34]

обогащение изотопов производится методом ионного обмена [65].

Изотоп ^{147}Pm широко используется в качестве источника электронов для детекторов электронного захвата, приборов контроля запыленности, а также, как изотопы T и ^{85}Kr , в радиолуминесцентных лампах.

Заключение

В долговременных источниках питания, функционирующих на основе радиоактивного распада нестабильных изотопов, принципиально возможно использовать незначительное число элементов из всей таблицы Менделеева. При этом, принимая во внимание радиационную безопасность, технологические аспекты создания источников питания и т. д., лишь β -распад имеет перспективы практического применения, причем только изотопов T , ^{14}C , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{147}Pm .

Однако у стронция и прометия большие энергии β -электронов, превышающие радиационную стойкость большинства веществ, а у изотопа ^{14}C большой период полураспада и, следовательно, слишком незначительная интенсивность потока электронов. Приемлемыми параметрами для применения в бета-вольтаических генераторах обладают только тритий и изотоп никеля-63. При этом период полураспада трития почти на порядок меньше, чем у никеля, и, следовательно, интенсивность излучения электронов намного выше. Однако тритий — газ, поэтому создание источника с высокой плотностью является непростой задачей. Таким образом, наиболее предпочтительным перспективным материалом, служащим источником энергии в бета-вольтаических генераторах, является изотоп никель-63.

Библиографический список

- Koutitas, G. A review of energy efficiency in telecommunication networks / G. Koutitas, P. Demestichas // *Telfor Journal*. – 2010. – V. 2, N 1. – P. 2—7. URL: http://journal.telforrs/Published/Vol2No1/Vol2No1_A1.pdf
- Bose, B. K. Global energy scenario and impact of power electronics in 21st century / B. K. Bose // *IEEE Transactions on Industrial Electronics*. – 2013. – V. 60, N 7. – P. 2638—2651. DOI: 10.1109/TIE.2012.2203771
- Paradiso, J. A. Energy scavenging for mobile and wireless electronics / J. A. Paradiso, T. Starner // *IEEE Pervasive Computing*. – 2005. – V. 4, N 1. – P. 18—27. DOI: 10.1109/MPRV.2005.9
- Moseley, H. G. J. The Attainment of high potentials by the use of radium / H. G. J. Moseley, J. H. Fellow // *Proc. Royal Society of London A*. – 1913. – V. 88, N 605. – P. 471—476. DOI: 10.1098/rspa.1913.0045
- Singh, N. Radioisotopes — Applications in Physical Sciences / N. Singh. – Rijeka (Croatia): InTech, 2011. – 496 p. DOI: 10.5772/858
- Huffman, F. N. Nuclear-fueled cardiac pacemakers / F. N. Huffman, C. Norman // *Chest*. – 1974. – V. 65, N 6. – P. 667—672. DOI: 10.1378/chest.65.6.667
- Wei, X. Power sources and electrical recharging strategies for implantable medical devices / X. Wei, J. Liu // *Frontiers of Energy and Power Engineering in China*. – 2008. – V. 2. – N 1. – P. 1—13. DOI: 10.1007/s11708-008-0016-3
- Whalen, S. A. Improving power density and efficiency of miniature radioisotopic thermoelectric generators / S. A. Whalen, C. A. Applett, T. L. Aselage // *J. Power Sources*. – 2008. – V. 180, N 1. – P. 657—663. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2008.01.080
- Olsen, L. C. Betavoltaic power sources / L. C. Olsen, P. Cabauy, B. J. Elkind // *Physics Today*. – 2012. – V. 65, N 12. – P. 35—38. DOI: 10.1063/PT.3.1820
- Seaborg, G. T. Table of isotopes / G. T. Seaborg // *Rev. Modern Phys.* – 1944. – V. 16, N 1. – P. 1—32. DOI: 10.1103/RevModPhys.30.585
- Баранов, В. Ю. Изотопы: свойства, получение, применение / В. Ю. Баранов. – М.: Физматлит, 2005. – 600 с.
- By, Ц. С. Бета-распад / Ц. С. Бу, С. А. Мошковский. – М.: Атомиздат, 1970. – 397 с.
- Lewis, V. E. Beta decay of tritium / V. E. Lewis // *Nuclear Phys. A*. – 1970. – V. 151, N 1. – P. 120—128. DOI: 10.1016/0375-9474(70)90972-3
- Daris, R. Beta decay of tritium / R. Daris, C. St-Pierre // *Nuclear Phys. A*. – 1969. – V. 138, N 3. – P. 545—555. DOI: 10.1016/0375-9474(69)90237-1
- Windle, W. F. Microwatt radioisotope energy converters / W. F. Windle // *IEEE Transactions on Aerospace*. – 1964. – V. 2, N 2. – P. 646—651. DOI: 10.1109/TA.1964.4319649
- Rappaport, P. Radioactive charging effects with a dielectric medium / P. Rappaport, E. G. Lindler // *J. Appl. Phys.* – 1953. – V. 24, N 9. – P. 1110—1114. DOI: 10.1063/1.1721457
- Müller, S. Search for an admixture of a 17 keV neutrino in the β decay of ^{35}S / S. Müller, Ch. Shping, H. Daniel, O. Dragoun, N. Dragounová, H. Hagn, E. Hechtel, K.-H. Hiddemann, A. Špalek // *Zeitschrift für Naturforschung A*. – 1994. – V. 49, N 9. – P. 874—884. DOI: 10.1515/zna-1994-0910
- Thoennessen, M. Discovery of the isotopes with $11 \leq Z \leq 19$ / M. Thoennessen // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. – 2012. – V. 98, N 5. – P. 933—959. DOI: 10.1016/j.adt.2011.09.002
- Bogue, R. Powering tomorrow's sensor: a review of technologies. Pt 1 / R. Bogue // *Sensor Review*. – 2010. – V. 30, N 3. – P. 182—186. DOI: 10.1108/02602281011051344
- Meier, D. E. Production of ^{35}S for a liquid semiconductor betavoltaic / D. E. Meier, A. Y. Garnov, J. D. Robertson, J. W. Kwon, T. Wacharasindhu // *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2009. – V. 282, N 1. – P. 271—274. DOI: 10.1007/s10967-009-0157-9
- Heim, M. Discovery of the krypton isotopes / M. Heim, A. Fritsch, A. Schuh, A. Shore, M. Thoennessen // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. – 2010. – V. 96, N 4. – P. 333—340. DOI: 10.1016/j.adt.2010.01.001
- Collon, P. Tracing noble gas radionuclides in the environment / P. Collon, W. Kutschera, Z.-T. Lu // *Annual Review of Nuclear and Particle Science*. – 2004. – V. 54. – P. 39—67. DOI: 10.1146/annurev.nucl.53.041002.110622
- Eiting, C. J. Betavoltaic power cells / C. J. Eiting, V. Krishnamoorthy, E. Romero, S. Jones // *Proc. of the 42nd Power Sources Conf.* – 2006. Paper 25.5 – P. 601—605.
- Thoennessen, M. Discovery of isotopes with $Z \leq 10$ / M. Thoennessen // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. – 2012. – V. 98, N 1. – P. 43—62. DOI: 10.1016/j.adt.2011.08.002
- Lewis, G. N. A spectroscopic search for H_3 in concentrated H_2 / G. N. Lewis, F. H. Spedding // *Phys. Rev.* – 1933. – V. 43, N 12. – P. 964—966. DOI: 10.1103/PhysRev.43.964
- Eidinoff, M. L. Upper limit to the tritium content of ordinary water / M. L. Eidinoff // *The Journal of Chemical Physics*. – 1947. – V. 15, N 6. – P. 416. DOI: 10.1063/1.1746547
- Suhaimi, A. Measurement of $^{14}\text{N}(n,t)^{12}\text{C}$ reaction cross section in the energy range of 5.0 to 10.6 MeV / A. Suhaimi, R. Wölfle, S. M. Qaim, P. Warwick, G. Stöcklin // *Radiochimica Acta*. – 1988. – V. 43, N 3. – P. 133—138. DOI: 10.1524/ract.1988.43.3.133
- Oliver, B. M. Tritium half-life measured by helium-3 growth / B. M. Oliver, H. Farrar IV, M. M. Bretscher // *Applied Radiation and Isotopes*. – 1987. – V. 38, N 11. – P. 959—965. DOI: 10.1016/0883-2889(87)90268-1
- Myers, E. G. Atomic masses of tritium and helium-3 / E. G. Myers, A. Wagner, H. Kracke, B. A. Wesson // *Phys. Rev. Lett.* – 2015. – V. 114, N 1. – P. 013003—1—5. DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.013003
- Oliphant, M. L. E. Transmutation effects observed with heavy hydrogen / M. L. E. Oliphant, P. Harteck, O. M. Rutherford // *Proc. of the Royal Society of London A*. – 1934. – V. 144, N 853. – P. 692—703. DOI: 10.1098/rspa.1934.0077
- Morgan, L. Tritium breeding control within liquid metal blankets / L. Morgan, J. Pasley // *Fusion Engineering and Design*. – 2013. – V. 88, N 3. – P. 107—112. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2012.11.011
- Matsuura, H. Evaluation of tritium production rate in a gas-cooled reactor with continuous tritium recovery system for

fusion reactors / H. Matsuura, H. Nakaya, Y. Nakao, S. Shimakawa, M. Goto, Sh. Nakagawa, M. Nishikawa // Fusion Engineering and Design. – 2013. – V. 88, N 8–9. – P. 2219–2222. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2013.05.022

33. **Engelkemeir, A. G.** The half-life of radiocarbon (C^{14}) / A. G. Engelkemeir, W. H. Hamill, M. G. Inghram, W. F. Libby // Phys. Rev. – 1949. – V. 75, N 12. – P. 1825–1833. DOI: 10.1103/PhysRev.75.1825

34. **Langer, L. M.** Low energy Beta-Ray spectra: $Pm^{147} S^{35}$ / L. M. Langer, J. W. Motz, H. C. Price, Jr. // Phys. Rev. – 1950. – V. 77, N 7. – P. 798–806. DOI: 10.1103/PhysRev.77.798

35. **Korff, S. A.** On the contribution to the ionization at sea-level produced by the neutrons in the cosmic radiation / S. A. Korff // Terrestrial Magnetism and Atmospheric Electricity. – 1940. – V. 45, N 2. – P. 133–134. DOI: 10.1029/TE045i002p00133

36. **Hanna, G. C.** Thermal neutron cross sections and resonance integrals of the reactions $O^{17}(n,\alpha)C^{14}$, $Ar^{36}(n,\alpha)S^{33}$, and $N^{14}(n,p)C^{14}$ / G. C. Hanna, D. B. Primeau, P. R. Tunnicliffe // Canadian Journal of Physics. – 1961. – V. 39, N 12. – P. 1784–1806. DOI: 10.1139/p61-201

37. **Konstantinov, E. A.** ^{14}C emission from RBMK-1500 reactors and features determining it / E. A. Konstantinov, N. A. Korablev, E. N. Solov'ev, V. P. Shamov, V. L. Fedorov, A. M. Litvinov // Soviet Atomic Energy. – 1989. – V. 66, N 1. – P. 77–79. DOI: 10.1007/BF01121081

38. **Choppin, G.** Radiochemistry and nuclear chemistry / G. Choppin, J.-O. Liljenzin, J. Rydberg, C. Ekberg. – Amsterdam; Boston; Heidelberg; London; New York; Oxford; Paris; San Diego; San Francisco; Sydney; Tokyo: Academic Press (Elsevier), 2013. – 866 p. DOI: 10.1016/B978-0-12-405897-2.01001-6

39. **Mannik, L.** Laser enrichment of carbon-14 / L. Mannik, S. K. Brown // Appl. Phys. B. – 1985. – V. 86, N 2. – P. 79–86. DOI: 10.1007/BF00692553

40. **Voges, R.** Preparation of compounds labeled with tritium and carbon-14 / R. Voges, J. R. Heys, T. Moenius. – Wiley, 2009. – 682 p.

41. **Garofali, K.** Discovery of chromium, manganese, nickel, and copper isotopes / K. Garofali, R. Robinson, M. Thoennessen // Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 2012. – V. 98, N 2. – P. 356–372. DOI: 10.1016/j.adt.2011.11.002

42. **Gresits, I.** Determination of soft X-ray emitting isotopes in radioactive liquid wastes of nuclear power plants / I. Gresits, S. Tolgyesi // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2003. – V. 258, N 1. – P. 107–112. DOI: 10.1023/A:1026214310645

43. **Holm, E.** Radioanalytical studies of fallout ^{63}Ni / E. Holm, P. Rots, B. Skwarzec // International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes. – 1992. – V. 43, N 1–2. – P. 371–376. DOI: 10.1016/0883-2889(92)90107-P

44. **Colle, R.** ^{63}Ni , its half-life and standardization: Revisited / R. Colle, B. E. Zimmerman, P. Cassette, L. Laureano-Perez // Applied Radiation and Isotopes. – 2008. – V. 66, N 1. – P. 60–68. DOI: 10.1016/j.apradiso.2007.07.017

45. **Gaitskell, R. J.** A measurement of the beta spectrum of ^{63}Ni using a new type of calorimetric cryogenic detector / R. J. Gaitskell, L. C. Angrave, N. E. Booth, A. D. Hahn, A. M. Swift // Phys. Lett. B. – 1996. – V. 370, N 1–2. – P. 163–166. DOI: 10.1016/0370-2693(96)00084-6

46. **Angrave, L. C.** Measurement of the atomic exchange effect in nuclear β decay / L. C. Angrave, N. E. Booth, R. J. Gaitskell, G. L. Salmon // Phys. Rev. Lett. – 1998. – V. 80, N 8. – P. 1610–1613. DOI: 10.1103/PhysRevLett.80.1610

47. **Coursey, B. M.** The standardization of plutonium-241 and nickel-63 / B. M. Coursey, L. L. Lucas, A. Grau Malonda, E. Garcia-Torano // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1989. – V. 279, N 3. – P. 603–610. DOI: 10.1016/0168-9002(89)91310-7

48. **Le-Bret, C.** Study of the influence of the source quality on the determination of the shape factor of beta spectra / C. Le-Bret, M. Loidl, M. Rodrigues, X. Mougeot, J. Bouchard // J. Low Temperature Physics. – 2012. – V. 167, N 5. – P. 985–990. DOI: 10.1007/s10909-012-0607-6

49. **Sims, G. H. E.** The beta self-absorption of Ni^{63} as metallic nickel / G. H. E. Sims, D. G. Juhnke // International Journal of Applied Radiation and Isotopes. – 1967. – V. 18, N 10. – P. 727–728. DOI: 10.1016/0020-708X(67)90034-8

50. **Gelsema, W. J.** The self-absorption of the beta-radiation of ^{63}Ni in metallic nickel sources / W. J. Gelsema, L. Donk, J. H. T. F. P. v. Enkevort, H. A. Blijleven // Journal of Chemical Education. – 1969. – V. 46, N 8. – P. 528–530. DOI: 10.1021/ed046p528

51. **Barnes, I. L.** Nickel-63: standardization, half-life and neutron-capture cross-section / I. L. Barnes, S. B. Garfinkel, W. B. Mann // The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. – 1971. – V. 22, N 12. – P. 777–781. DOI: 10.1016/0020-708X(71)90143-8

52. **Sosnin, L. J.** Production of ^{63}Ni of high specific activity / L. J. Sosnin, I. A. Suvorov, A. N. Tcheltsov, B. I. Rogozev // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 1993. – V. 334, N 1. – P. 43–44. DOI: 10.1016/0168-9002(93)90526-N

53. **Numajiri, M.** Estimation of nickel-63 in steel and copper activated at high-energy accelerator facilities / M. Numajiri, Y. Oki, T. Suzuki, T. Miura, M. Taira, Yu. Kanda, K. Kondo // Applied Radiation and Isotopes. – 1994. – V. 45, N 4. – P. 509–514. DOI: 10.1016/0969-8043(94)90116-3

54. **Pustovalov, A. A.** ^{63}Ni -based β -electric current source / A. A. Pustovalov, V. V. Gusev, V. V. Zadde, N. S. Petrenko, L. A. Tsvetkov, A. V. Tikhomirov // Atomic Energy. – 2007. – V. 103, N 6. – P. 353–356. DOI: 10.1007/s10512-007-0151-7

55. **Parker, A. M.** Discovery of rubidium, strontium, molybdenum, and rhodium isotopes / A. M. Parker, M. Thoennessen // Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 2012. – V. 98, N 4. – P. 812–831. DOI: 10.1016/j.adt.2012.06.001

56. **Nystrom, A.** Discovery of yttrium, zirconium, niobium, technetium, and ruthenium isotopes / A. Nystrom, M. Thoennessen // Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 2012. – V. 98, N 2. – P. 95–119. DOI: 10.1016/j.adt.2011.12.002

57. **Horwitz, E. P.** SREX: A new process for the extraction and recovery of strontium from acidic nuclear waste streams / E. P. Horwitz, M. L. Dietz, D. E. Fisher // Solvent Extraction and Ion Exchange. – 1991. – V. 9, N 1. – P. 1–25. DOI: 10.1080/07366299108918039

58. **Loferski, J. J.** Radiation damage in Ge and Si detected by carrier lifetime changes: Damage thresholds / J. J. Loferski, P. Rappaport // Physical Review. – 1958. – V. 111, N 2. – P. 432–439.

59. **Flicker, H.** Construction of a promethium-147 atomic battery / H. Flicker, J. J. Loferski, T. S. Elleman // IEEE Transactions on Electron Devices. – 1964. – V. 11, N 1. – P. 2–8. DOI: 10.1109/TEED.1964.15271

60. **Manjunatha, H. C.** External bremsstrahlung of ^{90}Sr – ^{90}Y , ^{147}Pm and ^{204}Tl in detector compounds / H. C. Manjunatha, B. Rudraswamy // Radiation Physics and Chemistry. – 2013. – V. 85. – P. 95–101. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2012.12.022

61. **May, E.** Discovery of cesium, lanthanum, praseodymium and promethium isotopes / E. May, M. Thoennessen // Atomic Data and Nuclear Data Tables. – 2012. – V. 98, N 5. – P. 960–982. DOI: 10.1016/j.adt.2011.09.005

62. **Reader, J.** Promethium 147 hyperfine structure under high resolution / J. Reader, S. P. Davis // Journal of the Optical Society of America. – 1963. – V. 53, N 4. – P. 431–435. DOI: 10.1364/JOSA.53.000431

63. **Gorshkov, V. K.** ^{235}U fission product yields in the rare earth region / V. K. Gorshkov, R. N. Ivanov, G. M. Kukabadze, I. A. Reformatsky // Journal of Nuclear Energy. – 1958. – V. 8, N 1–3. – P. 69–73. DOI: 10.1016/0891-3919(58)90010-X

64. **Lee, C.-S.** Chemical study on the separation and purification of promethium-147 / C.-S. Lee, Y.-M. Wang, W.-L. Cheng, G. Ting // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 1989. – V. 130, N 1. – P. 21–37. DOI: 10.1007/BF02037697

65. **Yoshida, M.** A rapid separation method for determination of promethium-147 and samarium-151 in environmental samples with high performance liquid chromatography / M. Yoshida, S. Sumiya, H. Watanabe, K. Tobita // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 1995. – V. 197, N 2. – P. 219–227. DOI: 10.1007/BF02036001

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (Федеральная целевая программа «Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2014–2020 годы») (ID проекта RFMEFI57815X0102).

Radioactive isotopes betavoltaic generator technology

A. S. Bykov¹, M. D. Malinkovich¹, I. V. Kubasov¹, A. M. Kislyuk¹, D. A. Kiselev¹, S. V. Ksenich¹,
R. N. Zhukov¹, A. A. Temirov¹, M. V. Chichkov¹, A. A. Polisan¹, Yu. N. Parkhomenko¹

¹ *National University of Science and Technology MISiS, 4 Leninsky Prospekt, Moscow 119049, Russia*

Abstract. In this article we have analyzed radioactive isotope applications in the technology of autonomous power supplies and the materials used in radioisotope thermoelectric generators (RTGs), justified the advantage of manufacturing betavoltaic generators, compared them with other electric power sources and considered the mechanism of β -decay and positioned it among other types of nuclear transformations. We have also drawn up the basic radiation safety requirements to the materials used for the hull and the converter, analyzed some earlier designs of radioisotope betavoltaic sources and set up a list of isotopes suitable as energy sources in betavoltaic generators. Furthermore, we have analyzed methods of obtaining radioactive materials which exhibit β -decay, their basic properties and abundance in nature. In conclusion, the choice of nickel-63 isotope has been selected as preferable for betavoltaic generators due to the optimum combination of half-life, average particle energy and radiation intensity.

Keyword: power supplies, betavoltaic generators, radioactive radiation, isotopes

References

- Koutitas G., Demestichas P. A review of energy efficiency in telecommunication networks. *Telfor journal*, 2010, vol. 2, no. 1, pp. 2–7. URL: http://journal.telfor.rs/Published/Vol2No1/Vol2No1_A1.pdf
- Bose B. K. Global energy scenario and impact of power electronics in 21st century. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 2013, vol. 60, no. 7, pp. 2638–2651. DOI: 10.1109/TIE.2012.2203771
- Paradiso J. A., Starnar T. Energy scavenging for mobile and wireless electronics. *IEEE Pervasive Computing*, 2005, vol. 4, no. 1, pp. 18–27. DOI: 10.1109/MPRV.2005.9
- Moseley H. G. J., Fellow J. H. The Attainment of high potentials by the use of radium. *Proc. Royal Society of London A*, 1913, vol. 88, no. 605, pp. 471–476. DOI: 10.1098/rspa.1913.0045
- Singh N. Radioisotopes — Applications in Physical Sciences. Rijeka (Croatia): InTech, 2011. 496 p. DOI: 10.5772/858
- Huffman F. N., Norman C. Nuclear-fueled cardiac pacemakers. *Chest*, 1974, vol. 65, no. 6, pp. 667–672. DOI: 10.1378/chest.65.6.667
- Wei X., Liu J. Power sources and electrical recharging strategies for implantable medical devices. *Frontiers of Energy and Power Engineering in China*, 2008, vol. 2, no. 1, pp. 1–13. DOI: 10.1007/s11708-008-0016-3
- Whalen S. A., Apblett C. A., Aselage T. L. Improving power density and efficiency of miniature radioisotopic thermoelectric generators. *J. Power Sources*, 2008, vol. 180, no. 1, pp. 657–663. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2008.01.080
- Olsen L. C., Cabaay P., Elkind B. J. Betavoltaic power sources. *Physics Today*, 2012, vol. 65, no. 12, pp. 35–38. DOI: 10.1063/PT.3.1820
- Seaborg G. T. Table of isotopes. *Rev. Modern Physics*, 1944, vol. 16, no. 1, pp. 1–32. DOI: 10.1103/RevModPhys.30.585
- Baranov V. Yu. *Izotopy: svoystva, poluchenie, primenenie* [Isotopes: properties, production, application]. Moscow: Fizmatlit, 2005. 600 p. (In Russ.)
- Wu Ts. S., Moshkovskii S. A. *Beta-raspad* [Beta decay]. Moscow: Atomizdat, 1970. 397 p. (In Russ.)
- Lewis V. E. Beta decay of tritium. *Nuclear Phys.*, 1970, vol. A151, pp. 120–128. DOI: 10.1016/0375-9474(70)90972-3
- Daris R., St-Pierre C. Beta decay of tritium. *Nuclear Phys.*, 1969, vol. A138, pp. 545–555. DOI: 10.1016/0375-9474(69)90237-1
- Windle W. F. Microwatt radioisotope energy converters. *IEEE Transactions on Aerospace*, 1964, vol. 2, no. 2, pp. 646–651. DOI: 10.1109/TA.1964.4319649
- Rappaport P., Linder E. G. Radioactive charging effects with a dielectric medium. *J. Appl. Phys.*, 1953, vol. 24, no. 9, pp. 1110–1114. DOI: 10.1063/1.1721457
- Müller S., Shing Ch., Daniel H., Dragoun O., Dragounová N., Hagn H., Hechtl E., Hiddemann K.-H., Špalek A. Search for an admixture of a 17 keV neutrino in the β decay of ³⁵S. *Zeitschrift für Naturforschung A*, 1994, vol. 49, no. 9, pp. 874–884. DOI: 10.1515/zna-1994-0910
- Thoennessen M. Discovery of the isotopes with $11 \leq Z \leq 19$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2012, vol. 98, no. 5, pp. 933–959. DOI: 10.1016/j.adt.2011.09.002
- Bogue R. Powering tomorrow's sensor: a review of technologies. Pt 1. *Sensor Review*, 2010, vol. 30, no. 3, pp. 182–186. DOI: 10.1108/02602281011051344
- Meier D. E., Garnov A. Y., Robertson J. D., Kwon J. W., Wacharasinghu T. Production of ³⁵S for a liquid semiconductor betavoltaic. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2009, vol. 282, no. 1, pp. 271–274. DOI: 10.1007/s10967-009-0157-9
- Heim M., Fritsch A., Schuh A., Shore A., Thoennessen M. Discovery of the krypton isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2010, vol. 96, no. 4, pp. 333–340. DOI: 10.1016/j.adt.2010.01.001
- Collon P., Kutschera W., Lu Z.-T. Tracing noble gas radionuclides in the environment. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, 2004, vol. 54, pp. 39–67. DOI: 10.1146/annurev.nucl.53.041002.110622
- Eiting C. J., Krishnamoorthy V., Romero E., Jones S. Beta-voltaic power cells. *Proc. of the 42nd Power Sources Conf.*, 2006, pp. 601–605.
- Thoennessen M. Discovery of isotopes with $Z \leq 10$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2012, vol. 98, no. 1, pp. 43–62. DOI: 10.1016/j.adt.2011.08.002
- Lewis G. N., Spedding F. H. A spectroscopic search for H₃ in concentrated H₂. *Physical Review*, 1933, vol. 43, no. 12, pp. 964–966. DOI: 10.1103/PhysRev.43.964
- Eidinoff M. L. Upper limit to the tritium content of ordinary water. *The Journal of Chemical Physics*, 1947, vol. 15, no. 6, pp. 416. DOI: 10.1063/1.1746547
- Suhaimi A., Wölfe R., Qaim S. M., Warwick P., Stöcklin G. Measurement of ¹⁴N(n,t)¹²C reaction cross section in the energy range of 5.0 to 10.6 MeV. *Radiochimica Acta*, 1988, vol. 43, no. 3, pp. 133–138. DOI: 10.1524/ract.1988.43.3.133
- Oliver B. M., Farrar IV H., Bretscher M. M. Tritium half-life measured by helium-3 growth. *Applied Radiation and Isotopes*, 1987, vol. 38, no. 11, pp. 959–965. DOI: 10.1016/0883-2889(87)90268-1
- Myers E. G., Wagner A., Kracke H., Wesson B. A. Atomic masses of tritium and helium-3. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, vol. 114, no. 1, pp. 013003–1–5. DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.013003
- Oliphant M. L. E., Harteck P., Rutherford O. M. Transmutation effects observed with heavy hydrogen. *Proc. Royal Society of London A*, 1934, vol. 144, no. 853, pp. 692–703. DOI: 10.1098/rspa.1934.0077
- Morgan L., Pasley J. Tritium breeding control within liquid metal blankets. *Fusion Engineering and Design*, 2013, vol. 88, no. 3, pp. 107–112. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2012.11.011
- Matsuura H., Nakaya H., Nakao Y., Shimakawa S., Goto M., Nakagawa Sh., Nishikawa M. Evaluation of tritium production rate in a gas-cooled reactor with continuous tritium recovery system for fusion reactors. *Fusion Engineering and Design*, 2013, vol. 88, no. 8–9, pp. 2219–2222. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2013.05.022

Information about authors:

Alexander S. Bykov¹ — Cand. Sci. (Eng.), Associate Professor (xalex1349@mail.ru); **Mikhail D. Malinkovich¹** — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Associate Professor (malinkovich@yandex.ru); **Ilya V. Kubasov¹** — Assistant; **Alexander M. Kislyuk¹** — Master Student; **Dmitry A. Kiselev¹** — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher; **Sergey V. Ksenich¹** — Engineer; **Roman N. Zhukov¹** — Engineer; **Alexander A. Temirov¹** — Assistant; **Maxim V. Chichkov¹** — Engineer; **Andrey A. Polisan¹** — Dr. Sci. (Eng.), Professor; **Yury N. Parkhomenko¹** — Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor.

33. Engelkemeir A. G., Hamill W. H., Inghram M. G., Libby W. F. The half-life of radiocarbon (C^{14}). *Phys. Rev.*, 1949, vol. 75, no. 12, pp. 1825–1833. DOI: 10.1103/PhysRev.75.1825
34. Langer L. M., Motz J. W., Price, Jr. H. C. Low energy Beta-Ray spectra: Pm^{147} S^{35} . *Phys. Rev.*, 1950, vol. 77, no. 7, pp. 798–806. DOI: 10.1103/PhysRev.77.798
35. Korff S. A. On the contribution to the ionization at sea-level produced by the neutrons in the cosmic radiation. *Terrestrial Magnetism and Atmospheric Electricity*, 1940, vol. 45, no. 2, pp. 133–134. DOI: 10.1029/TE045i002p00133
36. Hanna G. C., Primeau D. B., Tunnicliffe P. R. Thermal neutron cross sections and resonance integrals of the reactions $O^{17}(n,\alpha)C^{14}$, $Ar^{36}(n,\alpha)S^{33}$, and $N^{14}(n,p)C^{14}$. *Canadian Journal of Physics*, 1961, vol. 39, no. 12, pp. 1784–1806. DOI: 10.1139/p61-201
37. Konstantinov E. A., Korablev N. A., Solov'ev E. N., Shamov V. P., Fedorov V. L., Litvinov A. M. ^{14}C emission from RBMK-1500 reactors and features determining it. *Soviet Atomic Energy*, 1989, vol. 66, no. 1, pp. 77–79. DOI: 10.1007/BF01121081
38. Choppin G., Liljenzin J.-O., Rydberg J., Ekberg C. *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*. Amsterdam; Boston; Heidelberg; London; New York; Oxford; Paris; San Diego; San Francisco; Sydney; Tokyo: Academic Press (Elsevier), 2013. 866 p. DOI: 10.1016/B978-0-12-405897-2.01001-6
39. Mannik L., Brown S. K. Laser enrichment of carbon-14. *Appl. Phys. B*, 1985, vol. 86, no. 2, pp. 79–86. DOI: 10.1007/BF00692553
40. Voges R., Heys J. R., Moenius T. *Preparation of compounds labeled with tritium and carbon-14*. Wiley, 2009. 682 p.
41. Garofali K., Robinson R., Thoennessen M. Discovery of chromium, manganese, nickel, and copper isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2012, vol. 98, no. 2, pp. 356–372. DOI: 10.1016/j.adt.2011.11.002
42. Gresits I., Tolgyesi S. Determination of soft X-ray emitting isotopes in radioactive liquid wastes of nuclear power plants. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2003, vol. 258, no. 1, pp. 107–112. DOI: 10.1023/A:1026214310645
43. Holm E., Rots P., Skwarzec B. Radioanalytical studies of fallout ^{63}Ni . *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Pt A. Applied Radiation and Isotopes*, 1992, vol. 43, no. 1–2, pp. 371–376. DOI: 10.1016/0883-2889(92)90107-P
44. Colle R., Zimmermann B. E., Cassette P., Laureano-Perez L. ^{63}Ni , its half-life and standardization: Revisited. *Applied Radiation and Isotopes*, 2008, vol. 66, no. 1, pp. 60–68. DOI: 10.1016/j.apradiso.2007.07.017
45. Gaitskell R. J., Angrave L. C., Booth N. E., Hahn A. D., Swift A. M. A measurement of the beta spectrum of ^{63}Ni using a new type of calorimetric cryogenic detector. *Physics Letters B*, 1996, vol. 370, no. 1–2, pp. 163–166. DOI: 10.1016/0370-2693(96)00084-6
46. Angrave L. C., Booth N. E., Gaitskell R. J., Salmon G. L. Measurement of the atomic exchange effect in nuclear β decay. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, vol. 80, no. 8, pp. 1610–1613. DOI: 10.1103/PhysRevLett.80.1610
47. Coursey B. M., Lucas L. L., Grau Malonda A., Garcia-Torano E. The standardization of plutonium-241 and nickel-63. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1989, vol. 279, no. 3, pp. 603–610. DOI: 10.1016/0168-9002(89)91310-7
48. Le-Bret C., Loidl M., Rodrigues M., Mougeot X., Bouchard J. Study of the influence of the source quality on the determination of the shape factor of beta spectra. *J. Low Temperature Physics*, 2012, vol. 167, no. 5, pp. 985–990. DOI: 10.1007/s10909-012-0607-6
49. Sims G. H. E., Juhnke D. G. The beta self-absorption of Ni^{63} as metallic nickel. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 1967, vol. 18, no. 11, pp. 727–728. DOI: 10.1016/0020-708X(67)90034-8
50. Gelsema W. J., Donk L., v. Enckevort J. H. T. F. P., Blijleven H. A. The self-absorption of the beta-radiation of ^{63}Ni in metallic nickel sources. *J. Chemical Education*, 1969, vol. 46, no. 8, pp. 528–530. DOI: 10.1021/ed046p528
51. Barnes I. L., Garfinkel S. B., Mann W. B. Nickel-63: standardization, half-life and neutron-capture cross-section. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 1971, vol. 22, no. 12, pp. 777–781. DOI: 10.1016/0020-708X(71)90143-8
52. Sosnin L. J., Suvorov I. A., Tchel'tsov A. N., Rogozev B. I. Production of ^{63}Ni of high specific activity. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 1993, vol. 334, no. 1, pp. 43–44. DOI: 10.1016/0168-9002(93)90526-N
53. Numajiri M., Oki Y., Suzuki T., Miura T., Taira M., Kanda Yu., Kondo K. Estimation of nickel-63 in steel and copper activated at high-energy accelerator facilities. *Applied Radiation and Isotopes*, 1994, vol. 45, no. 4, pp. 509–514. DOI: 10.1016/0969-8043(94)90116-3
54. Pustovalov A. A., Gusev V. V., Zadne V. V., Petrenko N. S., Tsvetkov L. A., Tikhomirov A. V. ^{63}Ni -based β -electric current source. *Atomic Energy*, 2007, vol. 103, no. 6, pp. 353–356. DOI: 10.1007/s10512-007-0151-7
55. Parker A. M., Thoennessen M. Discovery of rubidium, strontium, molybdenum, and rhodium isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2012, vol. 98, no. 4, pp. 812–831. DOI: 10.1016/j.adt.2012.06.001
56. Nystrom A., Thoennessen M. Discovery of yttrium, zirconium, niobium, technetium, and ruthenium isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2012, vol. 98, no. 2, pp. 95–119. DOI: 10.1016/j.adt.2011.12.002
57. Horwitz E. P., Dietz M. L., Fisher D. E. SREX: A new process for the extraction and recovery of strontium from acidic nuclear waste streams. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 1991, vol. 9, no. 1, pp. 1–25. DOI: 10.1080/07366299108918039
58. Loferski J. J., Rappaport P. Radiation damage in Ge and Si detected by carrier lifetime changes: Damage thresholds. *Physical Review*, 1958, vol. 111, no. 2, pp. 432–439.
59. Flicker H., Loferski J. J., Elleman T. S. Construction of a promethium-147 atomic battery. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 1964, vol. 11, no. 1, pp. 2–8. DOI: 10.1109/T-ED.1964.15271
60. Manjunatha H. C., Rudraswamy B. External bremsstrahlung of ^{90}Sr – ^{90}Y , ^{147}Pm and ^{204}Tl in detector compounds. *Radiation Physics and Chemistry*, 2013, vol. 85, pp. 95–101. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2012.12.022
61. May E., Thoennessen M. Discovery of cesium, lanthanum, praseodymium and promethium isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2012, vol. 98, no. 5, pp. 960–982. DOI: 10.1016/j.adt.2011.09.005
62. Reader J., Davis S. P. Promethium 147 hyperfine structure under high resolution. *Journal of the Optical Society of America*, 1963, vol. 53, no. 4, pp. 431–435. DOI: 10.1364/JOSA.53.000431
63. Gorshkov V. K., Ivanov R. N., Kukabadze G. M., Reformat'sky I. A. ^{235}U Fission product yields in the rare earth region. *Journal of Nuclear Energy*, 1958, vol. 8, no. 1–3, pp. 69–73. DOI: 10.1016/0891-3919(58)90010-X
64. Lee C.-S., Wang Y.-M., Cheng W.-L., Ting G. Chemical study on the separation and purification of promethium-147. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1989, vol. 130, no. 1, pp. 21–37. DOI: 10.1007/BF02037697
65. Yoshida M., Sumiya S., Watanabe H., Tobita K. A rapid separation method for determination of promethium-147 and samarium-151 in environmental samples with high performance liquid chromatography. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1995, vol. 197, no. 2, pp. 219–227. DOI: 10.1007/BF02036001

Acknowledgements. The work was performed with financial support of the Ministry of Education and Science of the Russian Federation (Federal Target Program for Research and Developments in Top Priority Development Fields of Russian Science and Technology for 2014–2020 (Project ID RFMEF157815X0102).