

15;05.6;09.1

## Разработка методики количественного сравнения оптической мощности самосветящихся кристаллов

© М.К. Мягих<sup>1</sup>, П.А. Дементьев<sup>2</sup>, Е.В. Дементьева<sup>2</sup>, Е.В. Шерстнёв<sup>2</sup>, М.В. Заморянская<sup>2</sup><sup>1</sup> Университет ИТМО, Санкт-Петербург, Россия<sup>2</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: demenp@yandex.ru

Поступило в Редакцию 11 октября 2023 г.

В окончательной редакции 15 декабря 2023 г.

Принято к публикации 16 декабря 2023 г.

Описывается методика количественного сравнения светимости самосветящихся образцов на основе измерения фототока. Данная методика учитывает спектры радиационно-индуцированной люминесценции (самосвечения) исследуемых образцов, спектральные функции спектрометра и фотодетектора. Расчеты, выполняемые по данной методике, открывают возможность количественного определения мощности оптического излучения самосветящегося кристалла. Также предлагаемая методика может быть применена для сравнения светимости материалов под действием радиоактивного излучения.

**Ключевые слова:** оптическая мощность, радиационно-индуцированная люминесценция, редкоземельные ионы, циркон, ксенотим.

DOI: 10.61011/PJTF.2024.07.57462.19766

Многие современные электронные устройства (чаще всего микропроцессоры и модули памяти) требуют не только основного источника энергии в виде питания от сети или емких аккумуляторных батарей, но и постоянного питания от источников слабого тока, таких как малые химические источники питания. Основной проблемой использования химических источников энергии является их относительная недолговечность (не более 10–15 лет), что приводит к необходимости их регулярной замены на протяжении всего времени функционирования электронного устройства. При использовании электронных устройств в условиях ограниченной доступности (космос, Арктика и т.п.) желательным применением батареек со сроком службы до 50 лет. Перспективным вариантом решения данной проблемы являются объекты, содержащие в своей основе радионуклиды [1,2].

Преобразование энергии распада радионуклидов (альфа- или бета-излучение) в электрическую может происходить как прямым, так и непрямым способом [3]. Среди не прямых способов следует выделить использование так называемых самосветящихся кристаллов [4]. Самосветящийся кристалл — это эффективный сцинтиллятор, активированный альфа-радиоактивным изотопом, например  $^{241}\text{Am}$  или  $^{238}\text{Pu}$ . Самосвечение кристалла обусловлено распадом радиоактивного изотопа, введенного в матрицу кристалла при его выращивании [5]. Для использования такого источника оптического излучения в качестве источника электрического тока применяются фотоэлектрические преобразователи. Очевидно, что существует необходимость подбора оптимальных сочетаний радионуклид–сцинтиллятор. Наиболее простым способом является сравнение выходной оптической мощности самосвечения кристаллов либо

вынужденного свечения отдельных сцинтилляторов под действием альфа- или бета-излучения.

Целью данного исследования является разработка методики, позволяющей на количественном уровне сравнивать оптическую мощность самосветящихся образцов на основании измерения фототока детектора, вырабатываемого под действием оптического излучения, и с учетом спектрального состава самосвечения исследуемых образцов.

В работе исследовались два типа самосветящихся кристаллов:  $\text{ZrSiO}_4:\text{Tb}^{3+}$  и  $\text{YPO}_4:\text{Eu}^{3+}$ . Оба материала в процессе синтеза были активированы изотопом  $^{238}\text{Pu}$ . Способы получения и результаты исследования этих материалов детально описаны ранее [6]. В табл. 1 приведены составы исследованных образцов.

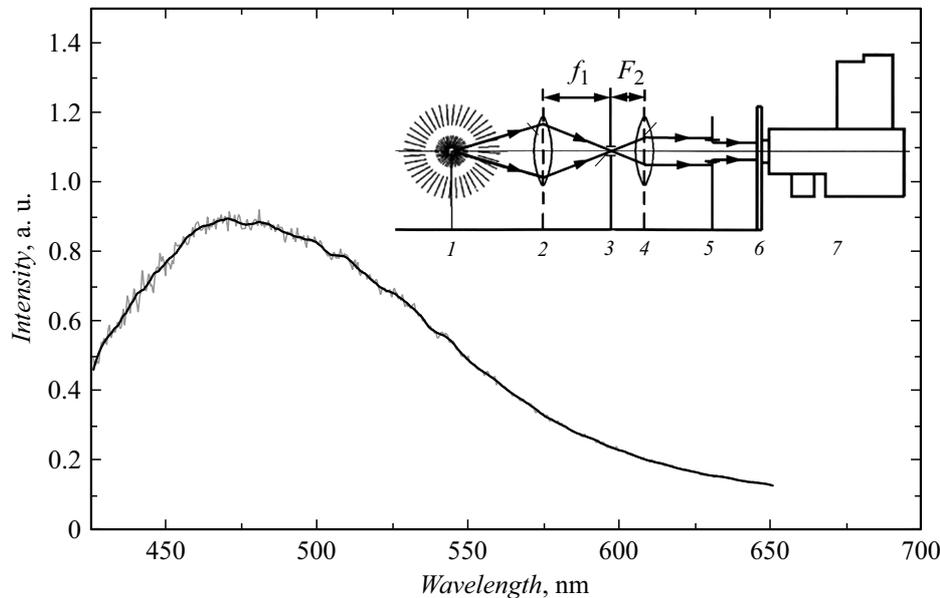
Размер полученных монокристаллов не превышал 1 mm. Для безопасной работы с материалом были изготовлены кюветы из латуни диаметром 20 mm с внутренней выемкой диаметром 4 mm. В выемку засыпались самосветящиеся монокристаллы, сверху они закрывались кварцевым стеклом (это с учетом того, что основным типом распада  $^{238}\text{Pu}$  является альфа-распад, позволяет безопасно работать с данными материалами).

Были измерены спектры самосвечения полученных образцов на специальном оптическом стенде (принципиальная схема показана на вставке к рис. 1). Для регистрации сигнала использовался оптический спектрометр с фотоумножителем ФЭУ-106.

Ввиду низкого уровня светимости образцов они были установлены непосредственно перед диафрагмой (позиция 3 на вставке к рис. 1). Приборная функция стенда представлена на рис. 1. Для определения спектральной функции использовалась лампа накаливания с источ-

Таблица 1. Составы исследованных самосветящихся образцов

Образец	Содержание активатора, wt.% (тип активатора)	Содержание радионуклида ( $^{238}\text{Pu}$ ), wt.%
ZrSiO <sub>4</sub> :Tb <sup>3+</sup> , $^{238}\text{Pu}$	0.3 (Tb <sup>3+</sup> )	0.02
YPO <sub>4</sub> :Eu <sup>3+</sup> , $^{238}\text{Pu}$	1.7 (Eu <sup>3+</sup> )	0.1



**Рис. 1.** Приборная функция стенда для измерения самосвечения. На вставке показана принципиальная оптическая схема стенда: 1 — источник света, 2 — коллиматор света, 3 — диафрагма (входная щель), 4 — кварцевая линза для формирования параллельного пучка света, 5 — выходная диафрагма для формирования параллельного пучка заданного диаметра, 6 — крепеж для монтажа оптического спектрометра, 7 — оптический спектрометр оригинальной конструкции [7].

ником постоянного тока, спектральная характеристика которой была измерена с помощью ДФС 36 (ЛМО).

Для измерения фототока, генерируемого под действием света от образцов, была разработана и изготовлена специальная установка. Она представляет собой светонепроницаемый бокс, внутри которого установлены держатель образца и детектор оптического излучения на основе кремниевого фотодиода [8]. Между образцом самосветящегося кристалла и детектором установлена отклоняющаяся заслонка для измерения темного сигнала фотодетектора. Схема установки представлена на рис. 2, а. На рис. 2, б представлена функция спектральной чувствительности кремниевого детектора, определенная методом сравнения относительно эталонного кремниевого фотодиода, калиброванного во ВНИИОФИ.

Были получены спектры самосвечения обоих образцов. Для корректного сравнения спектров самосвечения двух образцов было проведено вычитание фона и деление зарегистрированной интенсивности самосвечения на приборную функцию оптического стенда в каждой точке спектра. Полученные после указанных преобразований спектры приведены на рис. 3.

В спектре образца ZrSiO<sub>4</sub>:Tb<sup>3+</sup> наблюдаются полосы, связанные с переходами между уровнями Tb<sup>3+</sup>, в спектре образца YPO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup> — полосы, связанные с переходами между уровнями Eu<sup>3+</sup>. Люминесцентные полосы двух образцов наблюдаются в разных оптических диапазонах спектра.

На описанной выше установке (рис. 2, а) были проведены измерения величины фототока ( $J_f$ ), который вырабатывает детектор под действием самосвечения каждого из кристаллов.

Полученные значения фототока для каждого из образцов приведены на вставках к рис. 3. Усредненные значения фототоков, полученных в результате измерений, составили  $J_{f1} = 2.7 \cdot 10^{-8}$  А от образца ZrSiO<sub>4</sub>:Tb<sup>3+</sup> и  $J_{f2} = 1.2 \cdot 10^{-7}$  А от образца YPO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>. Однако для количественного сравнения оптической мощности излучения обоих образцов необходимо учитывать ряд параметров, в первую очередь спектральную функцию фотодетектора.

Для нахождения полной энергетической светимости образца необходим также учет геометрии размещения образца в установке для измерения фототока. Была составлена довольно простая геометрическая модель,

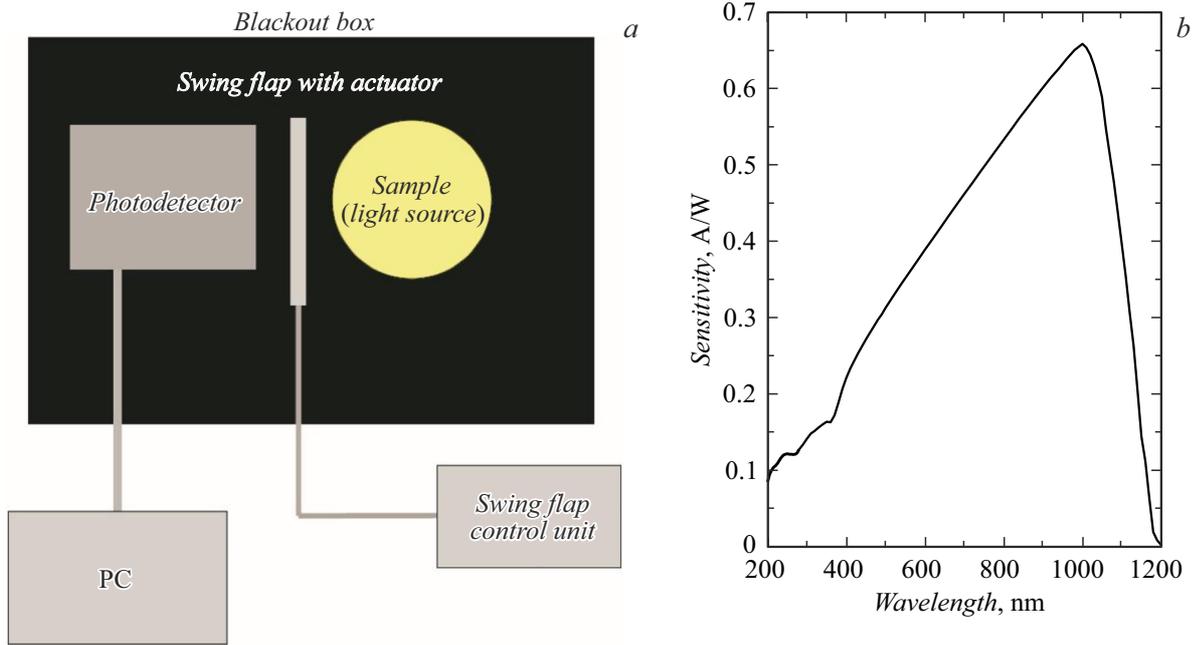


Рис. 2. *a* — схема установки измерения оптической мощности самосветящихся образцов; *b* — спектральная функция кремниевого детектора.

включающая квадратный фотодетектор, круглый источник света ненулевого размера, расположенные друг от друга на расстоянии, большем их характерных размеров. Учет всех параметров позволил определить долю излучения образца, попадающего на детектор:  $g \approx 0.021$ .

Мощность самосвечения образцов определялась по следующей методике. Был проведен расчет энергетического вклада в общую энергетическую светимость образца от каждого участка спектра, лежащего между соседними точками, по формуле

$$E(\lambda) = I(\lambda) \frac{hc}{\lambda}, \quad (1)$$

где  $\lambda$  — длина волны [nm];  $I(\lambda)$  — количество фотонов, зарегистрированных ФЭУ спектрометра за 1 s для длины волны  $\lambda$  (с учетом приборной функции стенда);  $h$  — постоянная Планка;  $c$  — скорость света.

Как показано на вставке к рис. 1, стенд для регистрации спектров самосвечения содержит входную и выходную щели. Использование щелей позволяло достичь высокого спектрального разрешения в спектрах на рис. 3, однако существенно снижало интенсивность излучения на пути от источника к спектрометру. Кроме того, источник в стенде находится на значительно большем расстоянии от спектрометра, чем от кремниевого детектора в установке измерения оптической мощности. Совокупность этих факторов приводит к тому, что теоретическая оптическая мощность источника, которая может быть получена путем сложения энергетических вкладов каждого из участков зарегистрированного спек-

тра, составляет лишь малую часть от реальной оптической мощности источника.

Далее путем интегрирования произведения функции чувствительности кремниевого фотодетектора  $s(\lambda)$  [A/W] и функции  $E(\lambda)$  по формуле (2) была получена величина фототока  $J_t$ , который будет вырабатывать фотодетектор, если разместить его в оптическом стенде для измерения спектров самосвечения на место спектрометра и предположить, что оптический стенд абсолютно прозрачен для всех длин волн:

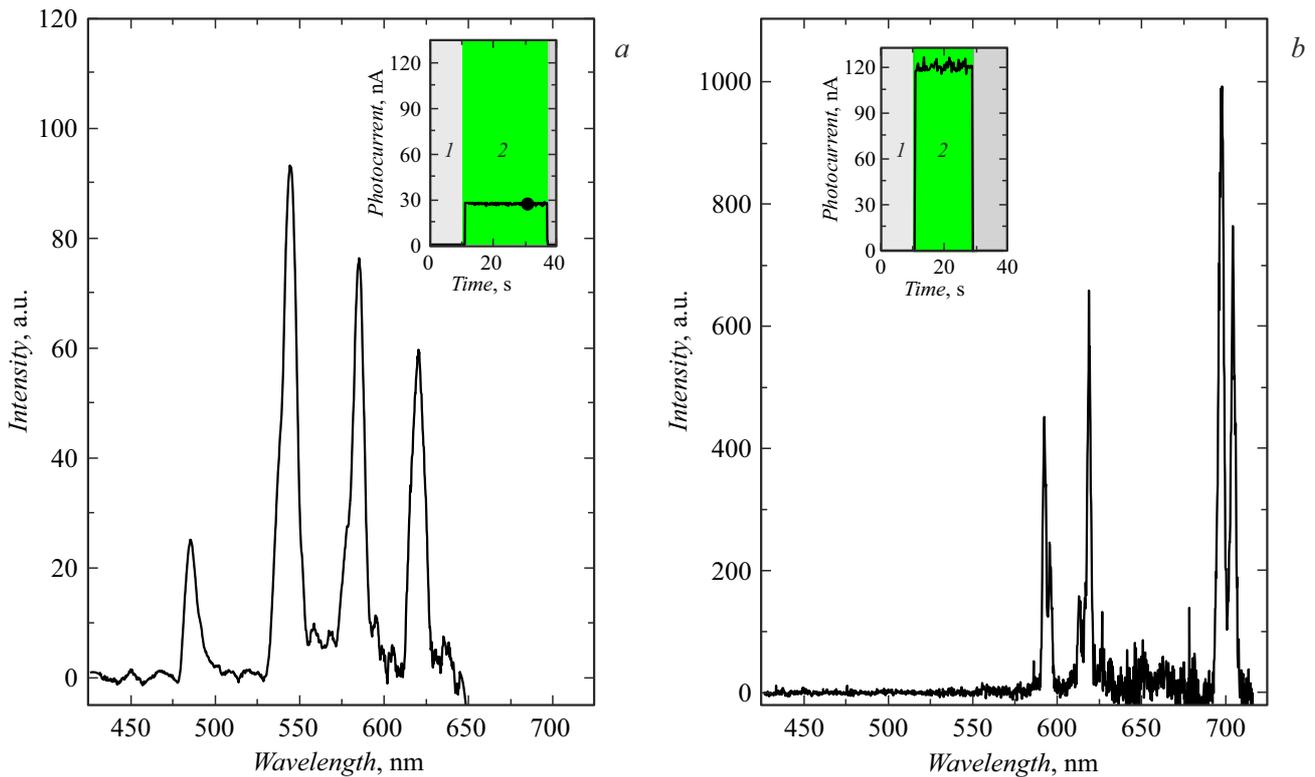
$$J_t = \int s(\lambda) E(\lambda) d\lambda. \quad (2)$$

Важно заметить, что с целью проверки корректности описываемой методики отношение теоретических фототоков  $J_{t2}/J_{t1}$  исследованных образцов сравнивалось с отношением  $J_{f2}/J_{f1}$  фототоков этих образцов, полученным экспериментально. По результатам расчетов

$$\frac{J_{t2}}{J_{t1}} \approx \frac{1.6 \cdot 10^{-14} [\text{A}]}{3.6 \cdot 10^{-15} [\text{A}]} \approx 4.4, \quad \frac{J_{f2}}{J_{f1}} \approx \frac{1.2 \cdot 10^{-7} [\text{A}]}{2.7 \cdot 10^{-8} [\text{A}]} \approx 4.4, \quad (3)$$

что служит показателем корректности проделанных действий.

Далее для каждого из образцов было найдено отношение величины тока, измеренного фотодетектором, к величине, рассчитанной теоретически ( $J_f/J_t$ ). Среднее значение этих отношений у двух образцов составило  $R = 7.5 \cdot 10^6$ . Эту величину можно использовать, чтобы напрямую определить полную оптическую мощность любого слабосветящегося объекта, светимость которого



**Рис. 3.** Спектры самосвечения образцов  $\text{ZrSiO}_4:\text{Tb}^{3+}$  (a) и  $\text{YPO}_4:\text{Eu}^{3+}$  (b). На вставках показаны зависимости фототока  $J_f$  от времени, измеренные кремниевым фотодетектором в светонепроницаемом боксе. Серые области 1 — детектор закрыт заслонкой, зеленые области 2 — заслонка открыта (цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

**Таблица 2.** Результаты вычисления светимостей образцов  $\text{ZrSiO}_4:\text{Tb}^{3+}$  и  $\text{YPO}_4:\text{Eu}^{3+}$

Образец	Измеренный фототок $J_f$ , А	Расчитанный по спектрам самосвечения фототок $J_r$ , А	Полная оптическая мощность, W
$\text{ZrSiO}_4:\text{Tb}^{3+}, {}^{238}\text{Pu}$	$2.7 \cdot 10^{-8}$	$3.6 \cdot 10^{-15}$	$3.6 \cdot 10^{-6}$
$\text{YPO}_4:\text{Eu}^{3+}, {}^{238}\text{Pu}$	$1.2 \cdot 10^{-7}$	$1.6 \cdot 10^{-14}$	$1.2 \cdot 10^{-5}$

возникает под действием внешнего или внутреннего возбуждения при условии полного повторения параметров оптического стенда: расстояния от источника до спектрометра, размеров входной и выходной щелей и т.д. Таким образом, полная оптическая мощность  $P$  образца может быть рассчитана следующим образом:

$$P = \frac{R \int E(\lambda) d\lambda}{g}. \quad (4)$$

Результаты, полученные путем применения описанной методики к образцам  $\text{ZrSiO}_4:\text{Tb}^{3+}$  и  $\text{YPO}_4:\text{Eu}^{3+}$ , приведены в табл. 2.

Таким образом, разработана методика сравнения оптической мощности излучения образцов с учетом спектра их излучения. Это позволяет сравнивать оптическую

мощность излучения для источников со сложным спектром излучения, что очень важно при работе с материалами, активированными редкоземельными ионами. Согласно расчетам, проведенным по данной методике, полная оптическая мощность образца  $\text{ZrSiO}_4:\text{Tb}^{3+}$  составила  $3.6 \cdot 10^{-6}$  W, а образца  $\text{YPO}_4:\text{Eu}^{3+}$  —  $1.2 \cdot 10^{-5}$  W. Описанные в работе стенд и методика могут быть также использованы для сравнительного анализа других слабо-светящихся образцов, светимость которых возникает под действием внешнего или внутреннего возбуждения.

#### Финансирование работы

Е.В. Дементьева, П.А. Дементьев благодарят за поддержку Российский научный фонд (проект № 23-23-00465).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] K.E. Bower, A.F. Rutkiewicz, C.C. Bower, S.M. Yousaf, in *Polymers, phosphors, and voltaics for radioisotope microbatteries*, ed. by K.E. Bower, Y.A. Barbanel, Y.G. Shreter, G.W. Bohnert (CRC Press, 2002), p. 441–453.
- [2] R. Walton, C. Anthony, D. Chapman, N. Metje, M. Ward, *J. Phys.: Conf. Ser.*, **476**, 012054 (2013).  
DOI: 10.1088/1742-6596/476/1/012054
- [3] O.L. Ayodele, K.O. Sanusi, M.T. Kahn, *J. Eng. Des. Technol.*, **17**, 172 (2019). DOI: 10.1108/JEDT-02-2017-0011
- [4] K.K. Prudchenko, I.A. Tolkachev, E.A. Silantieva, E.V. Kontrosh, *J. Phys.: Conf. Ser.*, **2103**, 012195 (2021).  
DOI: 10.1088/1742-6596/2103/1/012195
- [5] M.V. Zamoryanskaya, E.V. Dementeva, K.N. Orekhova, V.A. Kravets, A.N. Trofimov, G.A. Gusev, I. Ipatova, B.E. Burakov, *Mater. Res. Bull.*, **142**, 111431 (2021).  
DOI: 10.1016/j.materresbull.2021.111431
- [6] B.E. Burakov, J.P. Ipatova, M.A. Petrova, V.A. Zirlin, Y.V. Kuznetsova, M.V. Zamoryanskaya, *Procedia Chem.*, **7**, 654 (2012). DOI: 10.1016/j.proche.2012.10.099
- [7] M.V. Zamoryanskaya, S.G. Konnikov, A.N. Zamoryanskii, *Instrum. Exp. Tech.*, **47**, 477 (2004).  
DOI: 10.1023/B:INET.0000038392.08043.d6
- [8] В.В. Забродский, П.Н. Аруев, Б.Я. Бер, Д.Ю. Казанцев, А.Н. Горохов, А.В. Николаев, В.В. Филимонов, М.З. Шварц, Е.В. Шерстнёв, *Письма в ЖТФ*, **45** (24), 10 (2019). DOI: 10.21883/PJTF.2019.24.48794.17853  
[V.V. Zabrodskii, P.N. Aruev, B.Ya. Ber, D.Yu. Kazantsev, A.N. Gorokhov, A.V. Nikolaev, V.V. Filimonov, M.Z. Shvarts, E.V. Sherstnev, *Tech. Phys. Lett.*, **45** (12), 1226 (2019). DOI: 10.1134/S1063785019120289].