

УДК 621.039

ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ ОСОБЕННОСТИ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТАБЛЕТОК ИЗ ОКСИДА ТЕЛЛУРА ДЛЯ СЕРДЕЧНИКОВ МИШЕНЕЙ, ИСПОЛЬЗУЕМЫХ ПРИ ПРОИЗВОДСТВЕ ИОДА-131

© 2013 Л.Л. Казаков¹, Д.В. Козлов², Н.А. Бунаков², Д.Я. Вострецов²

¹ ОАО “ГНЦ НИИАР”, Ульяновская область, Димитровград-10

² Ульяновский государственный университет

Поступила в редакцию 26.11.2013

В данной статье рассмотрены методы и приемы изготовления таблеток из оксида теллура для сборки сердечников мишеней, а также вопросы оптимизации технологических параметров с целью увеличения плотности спеченных таблеток.

Ключевые слова: радионуклид, ядерный реактор, оксид теллура, мишень, прессование, спекание.

Препарат иода-131 позиционируется на рынке, как наиболее эффективное средство лечения онкологических заболеваний щитовидной железы. Кроме того, препарат применяется при исследовании функции почек. Основным российским производителем иода-131 является ОАО “ГНЦ НИИАР”. Радионуклид иод-131 образуется при облучении теллура нейтронами ядерного реактора. Схема трансмутации ядер приведена на рис. 1. В качестве стартового материала используется оксид теллура природного изотопного состава.

В целях экономии реакторного ресурса материал облучается в компактном, таблетированном виде. Из специально изготовленных таблеток формируются сердечники реакторных мишеней. После сборки и герметизации, мишени в составе специального облучательного устройства облучаются в ядерных реакторах (реактор СМ, РБТ-10/2 или РБТ-6).

Увеличение наработки I-131 можно достичь за счет увеличения загрузки стартового материала. Этого можно добиться как за счет увеличения количества облучательных устройств (мишеней), так и за счет увеличения загрузки стартового материала в каждую мишень. Первый способ ведет к необходимости изготовления дополнительных облучательных устройств. Увеличение в активной зоне количества нетопливных облучательных устройств приводит к расширению

активной зоны и снижению нейтронно-физическими характеристик реактора и, следовательно, к уменьшению выхода целевого радионуклида. Таким образом, усовершенствование и оптимизация параметров технологического процесса изготовления таблеток для сборки сердечников мишени является актуальной задачей для наработки I-131.

Для изготовления таблеток широко используются методы порошковой металлургии. Важные отличительные черты порошковой металлургии: исходным материалом является порошок – вещество в своеобразном агрегатном состоянии, а его превращение в спеченный материал или изделие (таблетка) происходит без расплавления основы. Технологический процесс производства таблеток методом порошковой металлургии состоит из следующих основных операций: получение порошка или смеси порошков, прессование таблеток, спекание.

Очень часто порошок одного и того же материала резко изменяет, в зависимости от метода производства, некоторые из своих свойств. На практике порошки принято характеризовать по физическим, химическим и технологическим свойствам. Под физическим свойствам порошков обычно подразумевают форму частиц и гранулометрический состав порошка. Под химическими свойствами в первую очередь подразумевают содержание основного материала, примесей и загрязнений. Под технологическими свойствами порошков понимают массу единицы объема порошка при свободной насыпке (насыпная плотность), текучесть порошка, прессуемость, т.е. способность порошка под влиянием внешнего усилия приобретать и удерживать определенную форму и размеры. Важными технологическими характеристиками порошков являются прессуемость и формируемость. Рассматривая способность

*Казаков Лев Леонидович, кандидат технических наук, ведущий научный сотрудник. E-mail: kazakov@niiar.ru
Козлов Дмитрий Владимирович, кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории материаловедения. E-mail: kozlovdv@ulsu.ru*

*Бунаков Никита Андреевич, аспирант.
E-mail: math08@mail.ru*

*Вострецов Дмитрий Ярославович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник.
E-mail: dimka97@mail.ru*

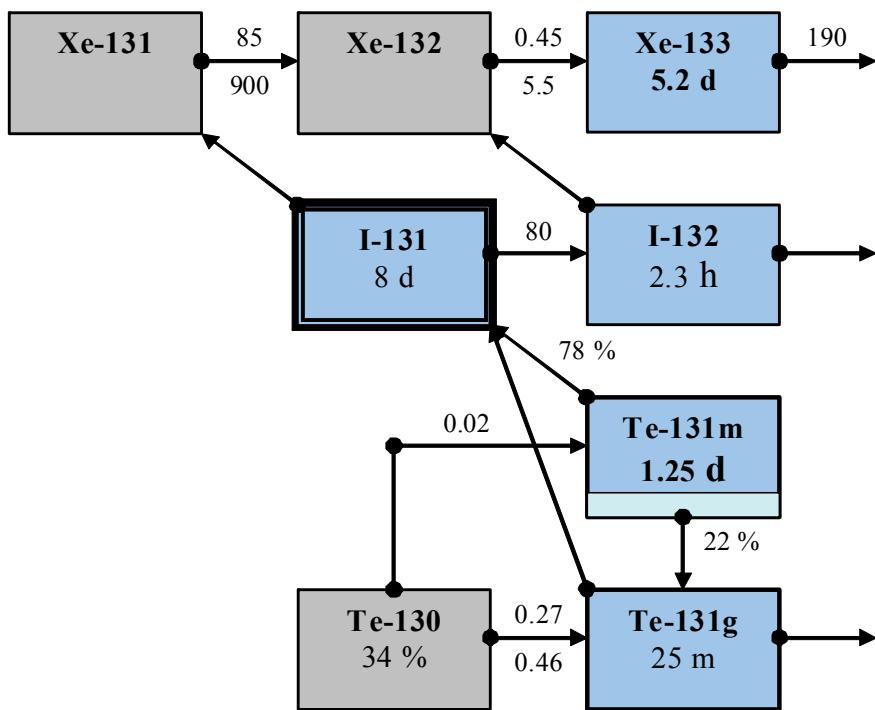


Рис. 1. Схема трансмутации ядер

порошка к уплотнению, необходимо иметь в виду, с одной стороны, способность к обжатию в процессе прессования (прессуемость), а с другой способность к сохранению формы после прессования (формуемость). Прессуемость в основном зависит от пластичности частиц порошка и в меньшей степени связана с величиной и формой частиц. Формуемость, наоборот, зависит в основном от формы и состояния поверхности частиц. На практике для количественной оценки прессуемости широко используют построение диаграмм прессования – зависимостей плотности спрессованных брикетов от давления прессования. Формуемость обычно определяют по брикету, полученному при испытании на прессуемость. Качественную оценку формуемости порошка производят по внешнему виду брикета – наличию или отсутствию трещин, состоянию поверхности, состоянию кромок. Как правило, порошки с хорошей формуемостью обладают невысокой прессуемостью, и наоборот. Прессуемость и формуемость порошков зависят от многих факторов, поэтому характеристики следует проверять на каждой новой партии порошка с целью корректировки принятых условий прессования. Порошки отличаются от компактных твердых тел значительной подвижностью частиц, способностью сохранять приданную им форму только при определенных условиях, свойством оказывать давление на ограждающую поверхность (внутренняя поверхность матрицы прессформы) и т.д.

Сущность процесса прессования заключает-

ся в деформировании некоторого объема сыпучего порошкового тела обжатием, при котором происходит уменьшение первоначального объема и формирование брикета заданной формы, размеров и свойств. Объем порошкового тела при прессовании изменяется в результате смещения отдельных частиц, заполняющих пустоты между ними, и за счет деформации частиц. При прессовании хрупких материалов деформация проявляется в разрушении и дроблении выступов на поверхности частиц. Если построить график, на котором по оси ординат отложить относительную плотность в процентах, а по оси абсцисс давление прессования, то зависимость между этими величинами в общей форме можно было бы выразить идеализированной кривой с тремя характерными участками (рис. 2) [1].

Из графика видно, что наиболее интенсивное уплотнение должно происходить на первой стадии процесса, связанной с перераспределением частиц и их более плотной упаковкой под действием прикладываемых внешних сил. Вторая стадия процесса характеризуется тем, что частицы порошка, упакованные максимально плотно, оказываются определенное сопротивление сжатию, давление возрастает, а плотность при этом некоторое время не увеличивается. Наконец, когда давление прессования превысит сопротивление сжатию частиц порошка, начинается их пластическая деформация и процесс уплотнения вступает в третью стадию.

Исходным материалом для изготовления таб-

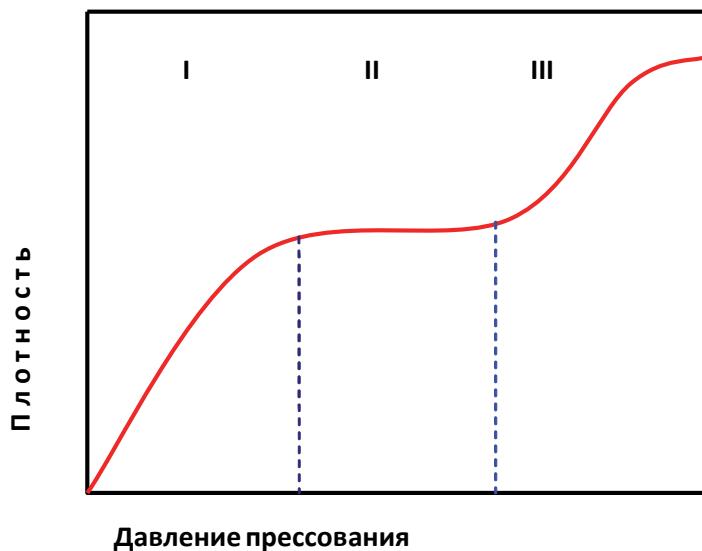


Рис. 2. Идеализированная кривая процесса уплотнения порошка при прессовании

леток является порошок оксида теллура, химически чистый природного изотопного состава. Требование к чистоте исходного сырья обусловлено высокими требованиями к чистоте конечного продукта – препарата I-131. Насыпная плотность используемых порошков обычно составляет 1,25...1,55 г/см³. При рентгенографических исследованиях порошков различных производителей были зафиксированы рефлексы, принадлежащие двум различным решеткам: TeO₂ и Te₂O₅. Наиболее интенсивные и многочисленные рефлексы принадлежали моноклинной решетке оксида теллура (Te₂O₅). Остальные тетрагональной решетке TeO₂. Желтый оттенок порошка в некоторых партиях, по всей видимости, определяется наличием в составе определенного количества аморфной составляющей α -TeO₃, которая имеет ярко-желтую окраску. α -TeO₃ разлагается при термообработке (выше 360 °C) до TeO₂ с промежуточным образованием Te₂O₅ [2, 3]. Частицы порошка имеют размер 1-6 мкм с небольшой долей крупных частиц размером 20-40 мкм и по форме напоминают неправильные, искаженные выпуклые многогранники. Изображения частиц порошка TeO₂ при различных увеличениях, полученные методом электронной сканирующей микроскопии, приведены на рис. 3 (А, Б, В, Г). Распределение частиц по размерам приведено на рис. 4.

Подготовка порошка и использование связки при прессовании влияет на прочность таблеток и способствует улучшению качества поверхности. Последнее обстоятельство важно, так как по технологическому процессу не предусмотрена операция шлифовки спеченных таблеток. Во избежание загрязнения таблеток примесями в качестве связки и пластификатора были подобраны нейтральные связующие составы, которые при операциях сушки и спекания удалялись практически полностью (дистиллированная вода двойной перегонки).

Применение смазки при прессовании – один из лучших способов уменьшения трения и улучшения процесса уплотнения порошка, в результате чего плотность повышается и обеспечивается более равномерное распределение ее по объему брикета. Эффект от применения смазок выражается в уменьшении коэффициентов внешнего и межчастичного трения, снижения давления прессования, требуемого для получения таблетки заданной плотности.

Спекание прессованных таблеток проводили после предварительной операции сушки при температуре ~ 100 °C в течение 2...3 часов. Электропечь сопротивления с терморегулятором для спекания таблеток, позволяет поддерживать стабильную температуру не хуже ± 4 °C. Спекание довольно сложный процесс, во время которого происходят удаление адсорбированных паров и газов, диффузионное перемещение атомов, рекристаллизация и др. Внешне спекание проявляется в изменении размеров нагреваемого порошкового тела, причем в основном происходит усадка. Поэтому большинство работ по изучению спекания посвящено выяснению механизма усадки [1]. Выбор температурного режима спекания в основном определяется методами получения данного оксида и температурой плавления.

Учет этих факторов позволяет определить некие границы температурного режима спекания, а выбор конкретной температуры спекания возможен лишь экспериментальным путем.

Усадка по высоте таблеток составила от 3,4 до 5,4 %. На рис. 6 представлена зависимость усадки по высоте таблетки от усилия прессования.

С точки зрения повышения эффективности

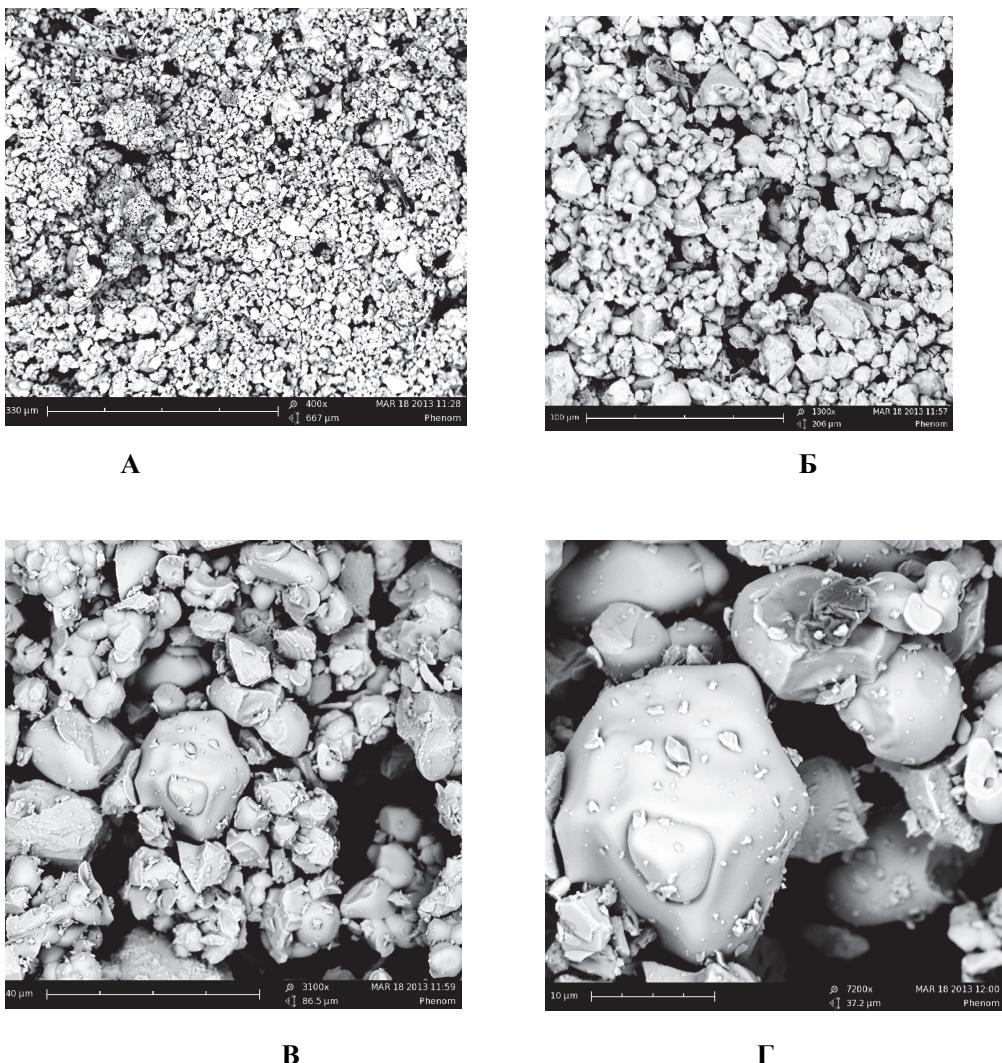


Рис. 3. Изображения частиц порошка TeO_2 , полученные на электронном сканирующем микроскопе с увеличением:
А – $\times 400$, **Б** – $\times 1300$, **В** – $\times 3100$, **Г** – $\times 7200$

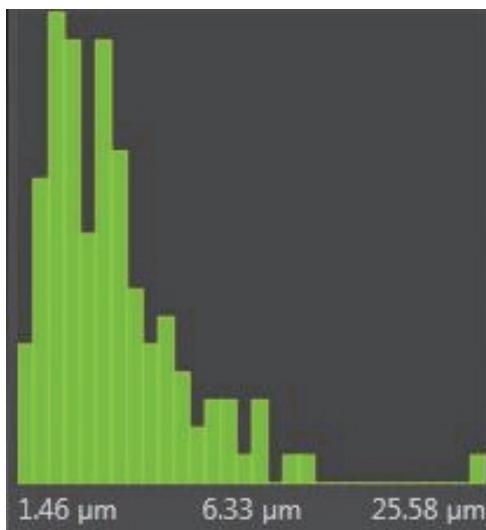


Рис. 4. Гистограмма размеров частиц порошка наработки йода при облучении необходимо увеличивать плотность таблеток TeO_2 , однако при приближении плотности к теоретической увели-

чивается трудоемкость и время дальнейшей переработки таблеток. Теоретическая плотность оксидов теллура составляет $5,4\ldots6,2 \text{ г}/\text{см}^3$ [4, 5].

Было проведено изучение микроструктуры спеченных таблеток на растровом электронном микроскопе с целью определения степени их неоднородности в различных зонах таблетки. На рис. 7 (А, Б, В) показаны структуры таблеток, полученных при различных давлениях прессования.

Видно, что качественных изменений в структуре таблетки с ростом давления прессования не происходит, хотя измерения показывают увеличение плотности около 10%. Существенно уменьшается количество самых мелких фрагментов размером менее $1,0\ldots0,5 \text{ мкм}$, которые по всей видимости поглощаются большими частицами в процессе коалесценции при температуре спекания, близких к температуре плавления.

На рис. 8 показан продольный скол таблет-

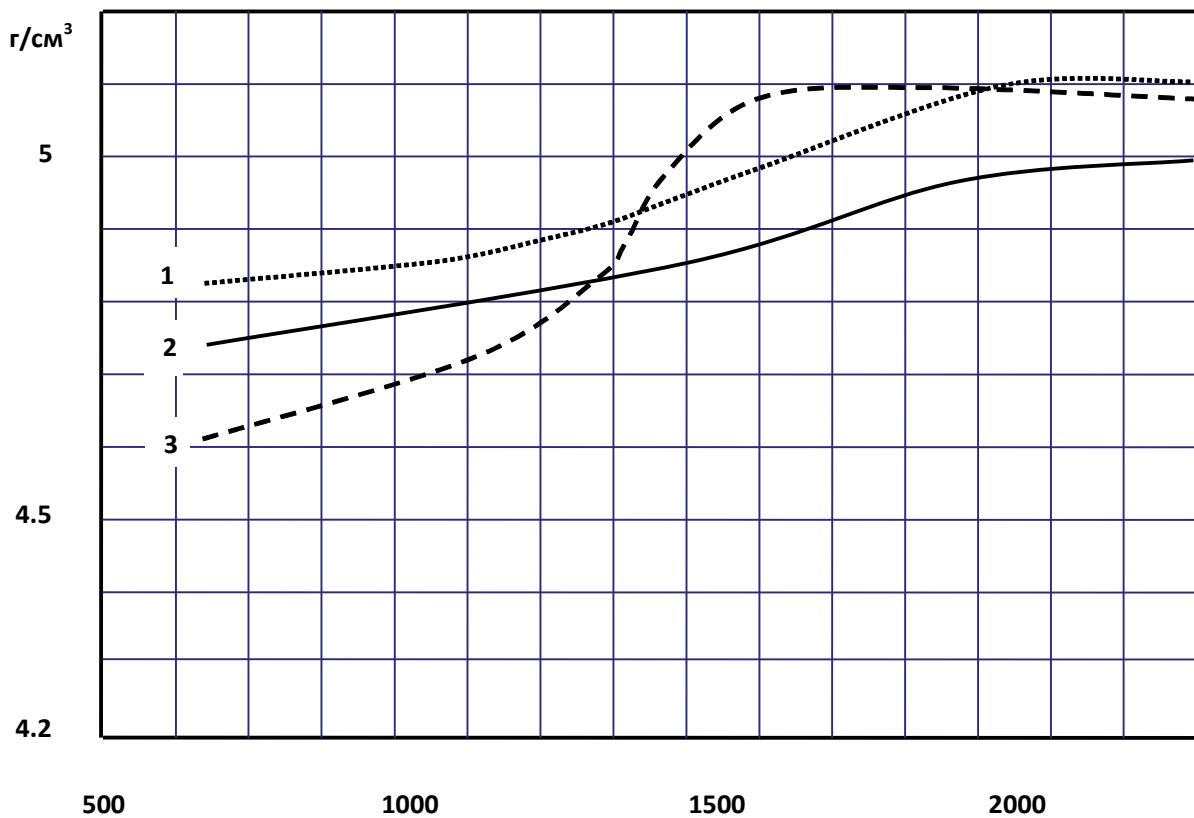


Рис. 5. Зависимость плотности спеченных таблеток от давления прессования
(температура спекания 680 °C):

1 – порошок TeO_2 с насыпной плотностью 1,25...1,35 г/см³;
2 – порошок TeO_2 с насыпной плотностью 1,50...1,55 г/см³, 3 – смесь порошков (1 : 1)

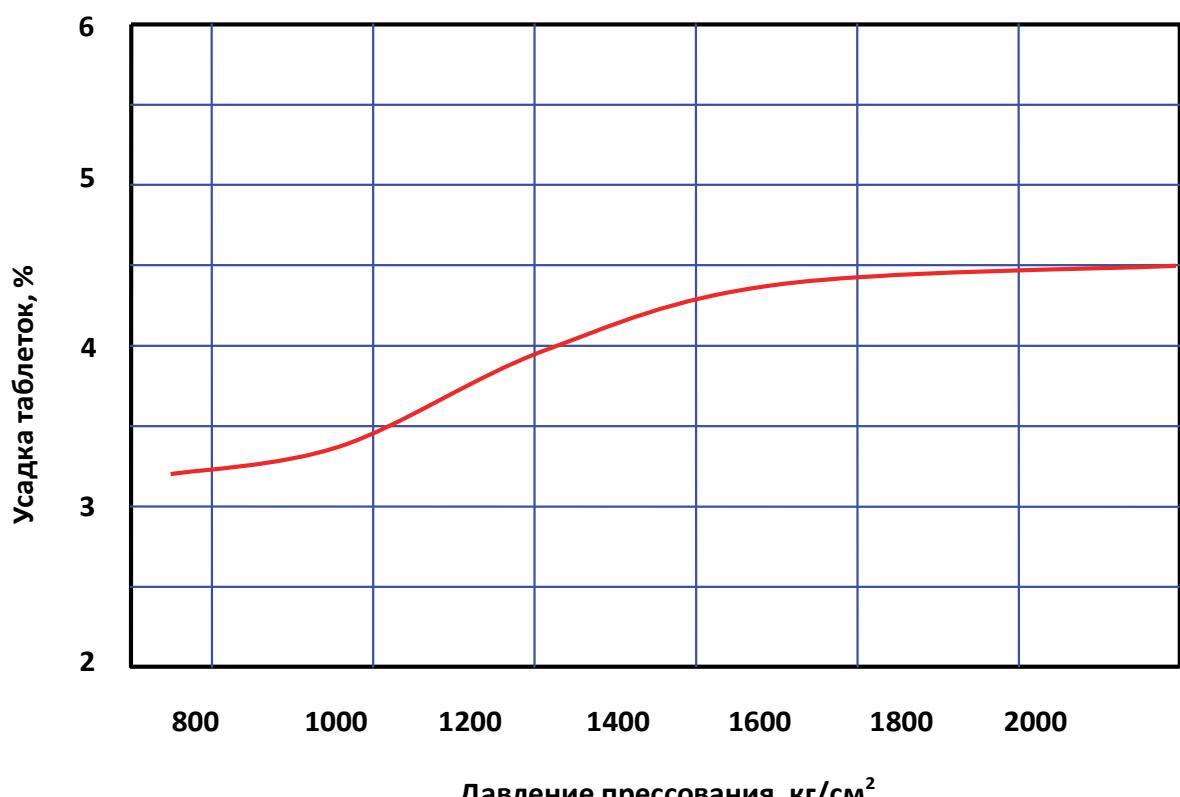


Рис. 6. Зависимость усадки по высоте таблеток от усилия прессования

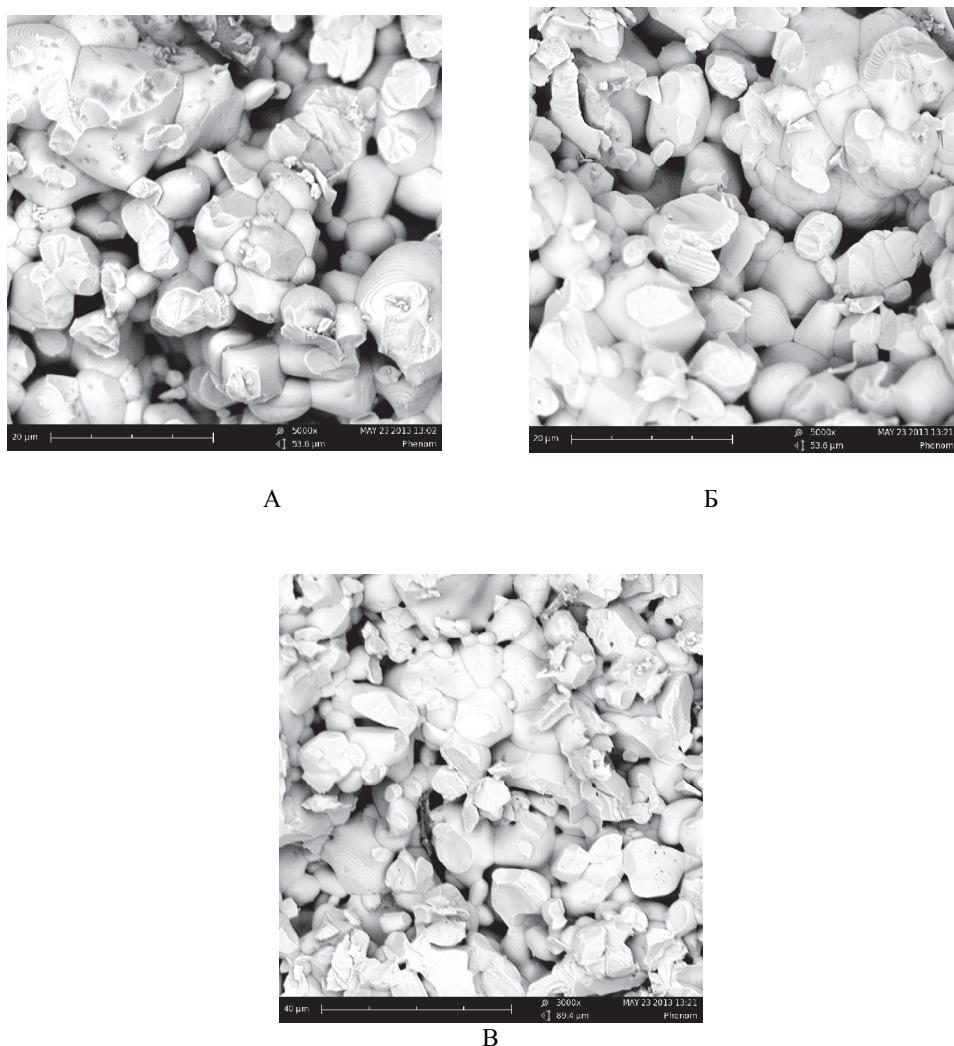


Рис. 7. Микроструктура таблеток, полученных при различном давлении прессования:
А – 90 МПа, Б – 100 МПа. В – 150 МПа

ки. У её цилиндрического края можно заметить следы разрушения частиц порошка, что может быть следствием сдвиговых напряжений, возникающих при взаимодействии прессуемого порошка и стенок матрицы прессформы.

Технология получения таблеток путем предварительного холодного прессования и дальнейшего спекания позволяет получить приемлемую для дальнейших технологических операций прочность таблеток, однако механическая прочность готовой таблетки может служить полезным критерием интегральной оценки правильности проведения всех технологических операций и однородности исходного сырья.

Для выработки критериев механической прочности ряд таблеток был испытан на универсальной испытательной машине для испытаний на растяжение – сжатие Walterbae AG LFM-20. На рис. 9 приведена характерная диаграмма сжатия таблеток. Диаграмма имеет вид, характерный для хрупких керамических материалов.

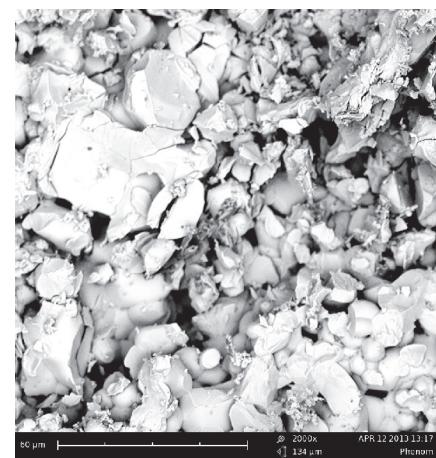


Рис. 8. Продольный скол таблетки около боковой поверхности, увеличение x2000

После достижения предельной нагрузки следует ее резкий спад, что соответствует хрупкому разрушению образца. Для всех испытанных образцов максимальное напряжение хорошо воспро-

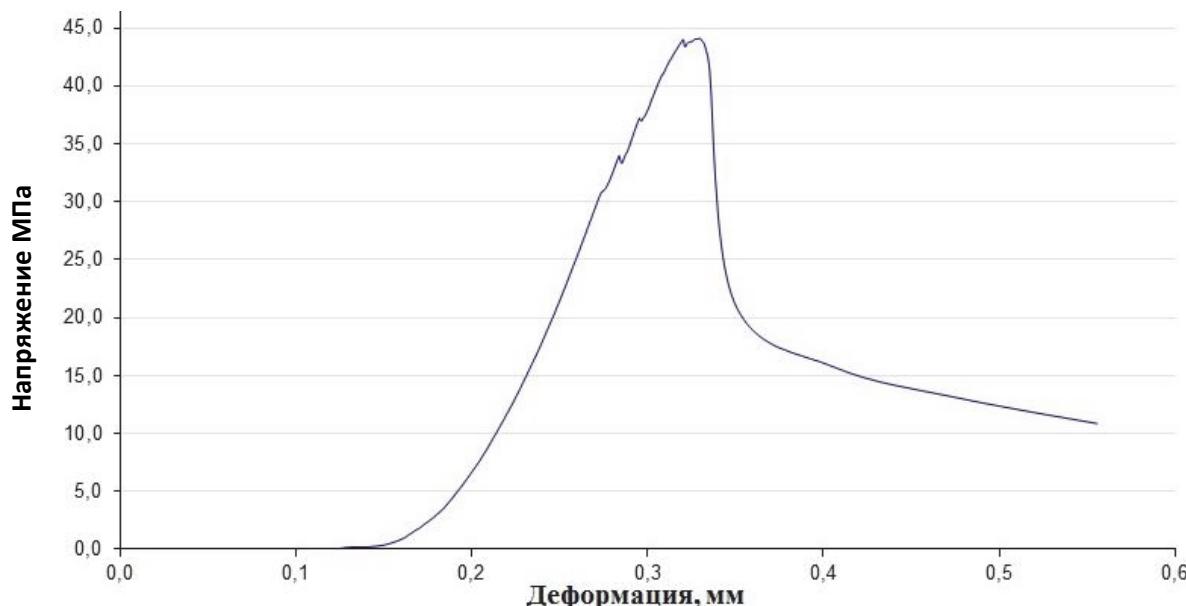


Рис. 9. Диаграмма сжатия спеченной таблетки

изводится и составляет 46 ± 2 МПа.

Таким образом, полученные значения прочности таблетки можно учитывать при дальнейших технологических операциях, а так же считать интегральным показателем соблюдения параметров технологического процесса изготовления таблеток.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кипарисов С.С., Либенсон Г.А. Порошковая металлургия. М.: Металлургия, 1980.
2. Химическая энциклопедия [Редкол.: Кнуниэнц И.Л. и др.. М.: Советская энциклопедия, 1995. Т. 4. 639 с.
3. Справочник химика [редкол.: Никольский Б.П. и др.]. 3-е изд., испр. Л.: Химия, 1971. Т. 2. 1168 с.
4. Ефимов А.И. и др. Химические свойства неорганических веществ. Справочник. Л.: Химия, 1983. 480 с.
5. Самсонов Г.В. Физико-механические свойства окислов. Справочник. М.: Металлургия. 1978.

TECHNOLOGICAL PECULIARITIES OF FABRICATION OF TELLURIUM OXIDE PELLETS FOR TARGET CORES USED FOR IODINE-131 PRODUCTION

© 2013 L.L. Kazakov¹, D.V. Kozlov², N.A. Bunakov², D.I. Vostretsov²

¹ JSC SSC RIAR, Ulyanovsk Region, Dimitrovgrad-10

² Ulyanovsk State University

The paper presents methods and techniques to fabricate pellets from tellurium oxide to assemble target cores as well as issues of optimization of production parameters to increase the density of sintered pellets.
Key words: radionuclide, nuclear reactor, tellurium oxide, target, pressing, sintering.

Lev Kazakov, Candidate of Technics, Leading Research Fellow.
E-mail: kazakov@nriar.ru

Dmitry Kozlov, Candidate of Physics and Mathematics, Head of Laboratory of Materials. E-mail: kozlovdv@ulsu.ru

Nikita Bunakov, Graduate Student. E-mail: math08@mail.ru

Dmitry Vostretsov, Candidate of Physics and Mathematics, Senior Research Fellow. E-mail: dimka97@mail.ru