

ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ ИЗГОТОВЛЕНИЯ НА МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА И ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ ТАБЛЕТОК TeO_2

© 2014 Н.А. Бунаков, В.В. Светухин

Ульяновский государственный университет

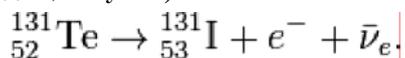
Поступила в редакцию 16.12.2014

В данной работе 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. Изучены влияния параметров изготовления таблеток на их структуру, механические свойства и теплопроводность.

Ключевые слова: оксид теллура, иод-131, методы порошковой металлургии, теплопроводность.

ВВЕДЕНИЕ

Основным способом получения короткоживущего изотопа иода-131, широко применяемого в диагностике и терапии ряда онкологических заболеваний, является нейтронное облучение соединений теллура. После захвата нейтронов стабильные изотопы теллура превращаются в ^{131}Te (25,0(1) мин), ядро которого претерпевает β -распад, с образованием иода-131 (период полураспада 8,02 суток).



Теллур является достаточно активным элементом и для исключения коррозионного воздействия паров теллура на конструкционные материалы облучательных устройств, облучают более стабильные соединения, например оксид теллура. Для удобства последующей разборки и переработки облученной мишени порошок оксида теллура компактируется в таблетки.

Основными требованиями к таблеткам, из которых собирается сердечник мишени являются: соответствие геометрическим размерам, равномерность физико-механических свойств в партии таблеток, механическая прочность, достаточная для дистанционного обращения с таблетками, но не препятствующая фрагментации таблеток при растворении. Для таблеток, получаемых путем холодного прессования и последующего спекания механическая прочность зависит от плотности таблетки. Плотность и структура пористости в свою очередь влияют на теплопроводность, которую необходимо учитывать при расчетах температурных режимов ми-

шеней с учетом их разогрева за счет мощного гамма облучения.

Таким образом, цель настоящего исследования, изучение влияния параметров изготовления таблетки на ее структуру и теплопроводность.

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-физических 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.

МЕТОДИКА ПРИГОТОВЛЕНИЯ ОБРАЗЦОВ

Исходным материалом для изготовления таблеток является порошок оксида теллура, химически чистый природного изотопного состава. Требование к чистоте исходного сырья обусловлено высокими требованиями к чистоте конечного продукта – препарата 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 состо-

Бунаков Никита Андреевич, аспирант, инженер-исследователь. E-mail: na_bunakov@mail.com.

Светухин Вячеслав Викторович, доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник.

E-mail: slava@sv.uven.ru

ит из следующих основных операций: получение порошка или смеси порошков, прессование таблеток, спекание.

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 использовалась дистиллированная вода двойной перегонки. Применение смазки при прессовании – один из лучших способов уменьшения трения и улучшения процесса уплотнения порошка [1].

Изготовление таблеток проводилось способом двухстороннего прессования под давлением в 130 и 170 МПа.

Спекание полученных таблеток после прессования и сушки проводилось при температуре 700°C.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

При рентгенографическом исследовании порошка наиболее интенсивные и многочисленные рефлексы принадлежат тетрагональной решетке оксида теллура (TeO_2) (рис. 1).

Желтый оттенок порошка, по всей видимости, определяется наличием в составе определенного количества аморфной составляющей α - TeO_3 , которая имеет ярко-желтую окраску. β - TeO_3 разлагается при термообработке (выше 360 °C) до TeO_2 [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 TeO_2 при различных увеличениях, полученные методом электронной сканирующей микроскопии, приведены на рис. 2 (А, Б, В, Г). Распределение частиц по размерам приведено на рис. 3.

С точки зрения повышения эффективности наработки иода необходимо увеличивать плотность таблеток TeO_2 , однако при приближении плотности к теоретической (5,4...6,2 г/см³) увеличивается трудоемкость и время дальнейшей переработки таблеток. Зависимость плотности от давления прессования приведена в табл. 1.

Изучение микроструктуры спеченных таблеток было проведено на растровом электронном микроскопе Phenom ProX с целью определения степени их неоднородности в различных зонах таблетки. На рис. 4 (А, Б) показаны структуры таблеток, полученных при различных давлениях прессования. С увеличением давления прессо-

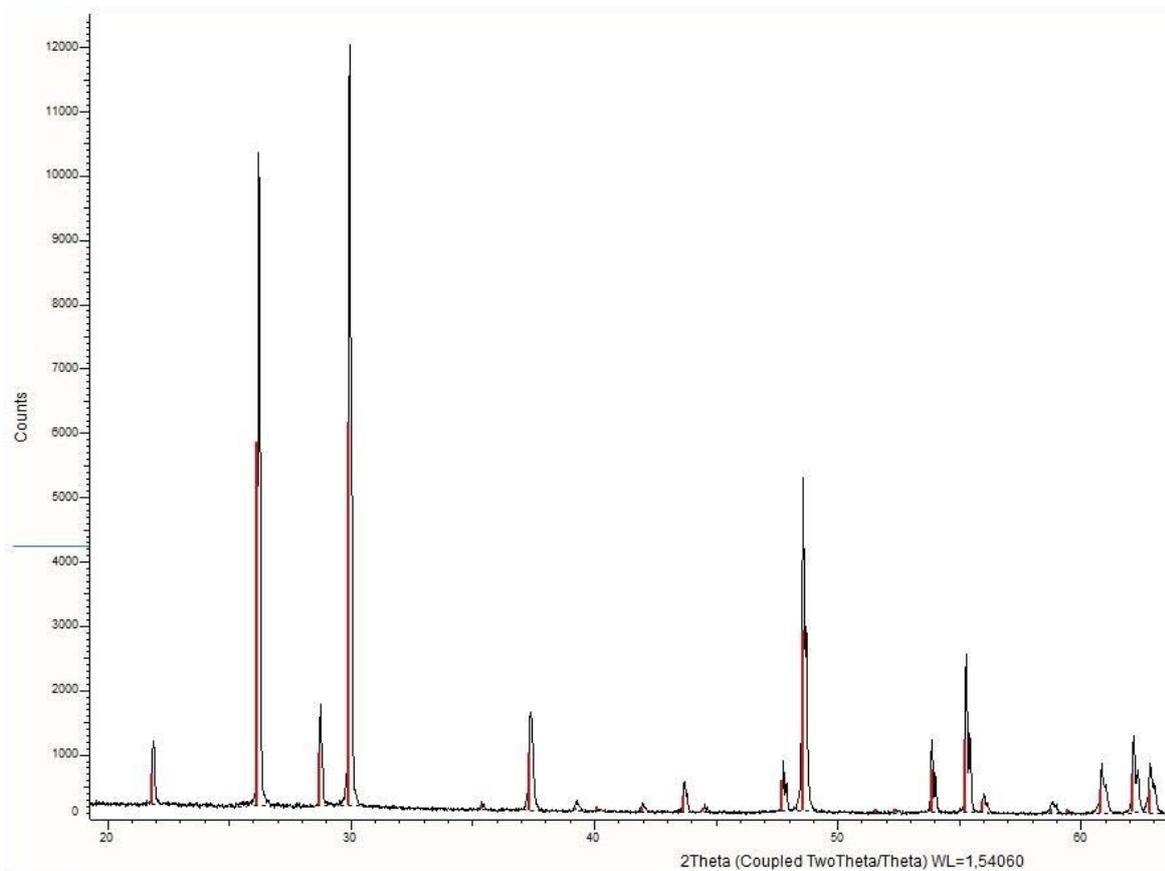


Рис. 1. Рентгенограмма порошка оксида теллура (красным цветом обозначены пики, принадлежащие фазе TeO_2)

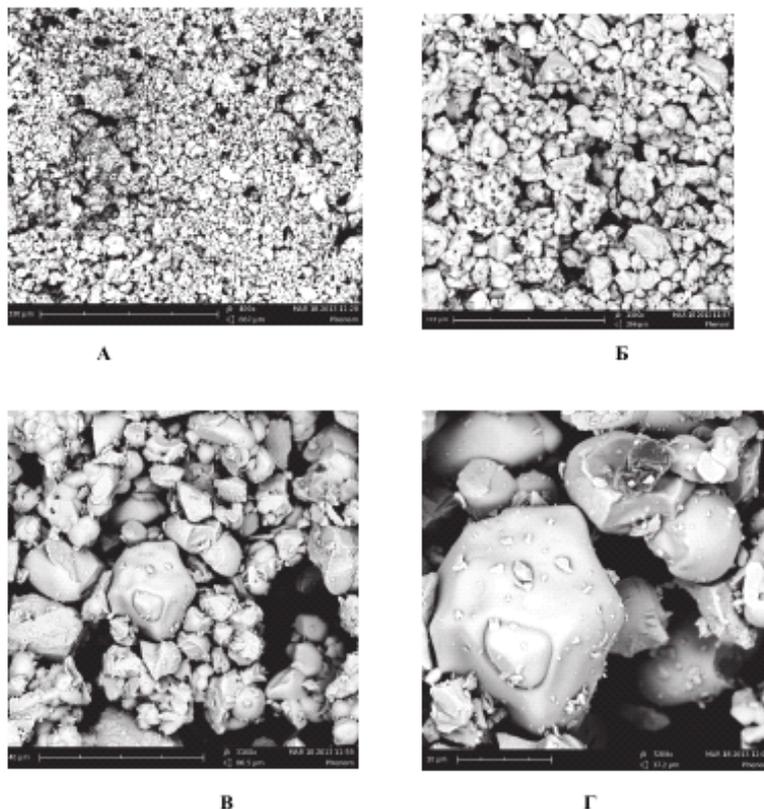


Рис. 2. Изображения частиц порошка TeO_2 , полученные на электронном сканирующем микроскопе с увеличением: А – $\times 400$, Б – $\times 1300$, В – $\times 3100$, Г – $\times 7200$

вания наблюдается небольшое увеличение частиц и увеличение плотности, что подтверждается измерениями (табл. 1). Уменьшается количество самых мелких фрагментов размером менее 1,0 - 0,5 мкм, которые, по всей видимости, погло-

щаются большими частицами в процессе коалесценции при температуре спекания, близких к температуре плавления.

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 таблетки проходили испытания на сжатия с использованием электромеханической испытательной машины LFM 125 kN. На рис. 5 приведена характерная диаграммы сжатия таблеток. Диаграмма имеет вид, характерный для хрупких керамических материалов. После достижения предельной нагрузки следует ее резкий спад, что соответствует хрупкому разрушению образца. Для всех испытанных образцов макси-

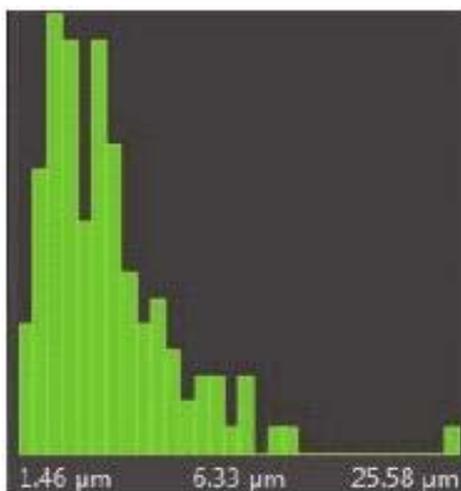
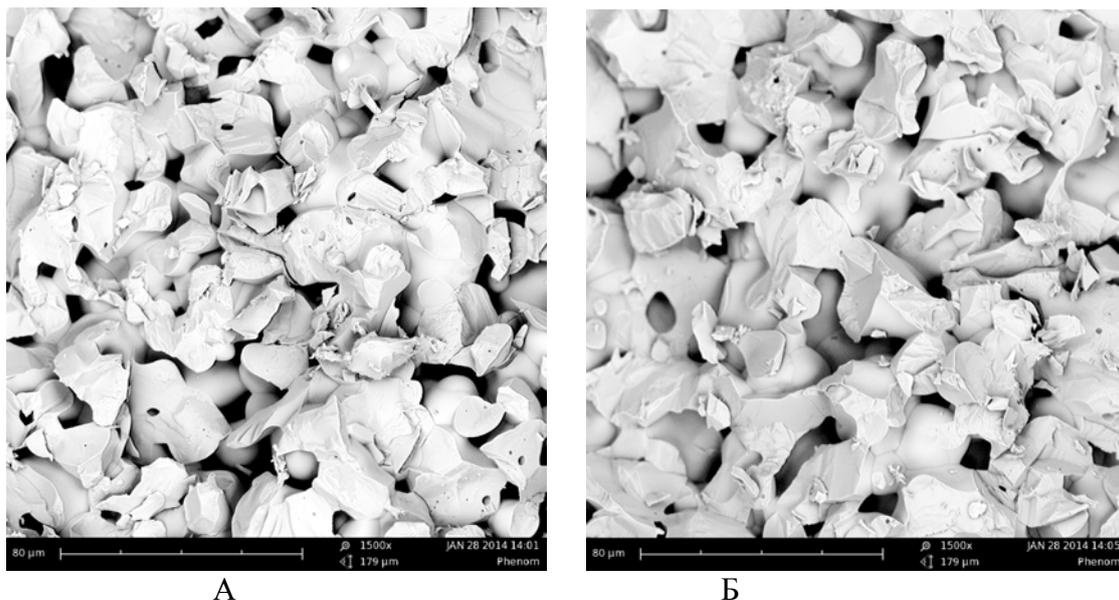


Рис. 3. Гистограмма размеров частиц порошка

Таблица 1. Характеристики полученных образцов таблеток диоксида теллура

№ Образца	Давление прессования, МПа.	Масса, г.	Плотность, г/см ³
1	130	3,54	5,65
2	170	3,59	5,72



А

Б

Рис. 4. Микроструктура спеченных таблеток, полученных при различном давлении прессования: А – 130 МПа, Б – 170 МПа

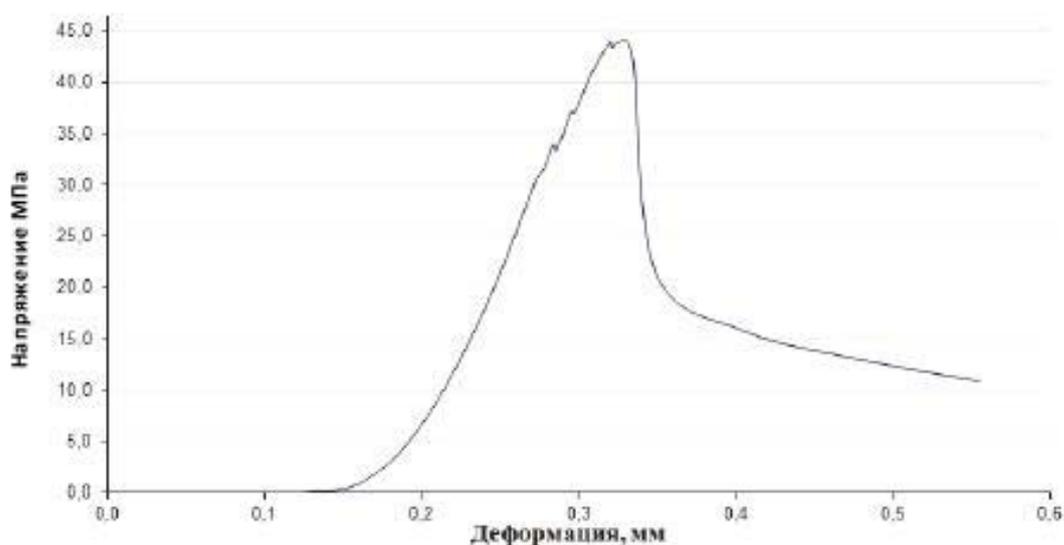


Рис. 5. Диаграмма сжатия спеченной таблетки

мальное напряжение хорошо воспроизводится и составляет 46 ± 2 МПа.

В оксиде теллура, как и во всех диэлектриках, практически не имеющих свободных электронов, перенос тепла осуществляется только фононами. Все это приводит к тому, что температурная зависимость коэффициента теплопроводности λ для диэлектриков имеет вид кривой с максимумом (рис.6). Фононную теплопроводность можно описать простой формулой $\lambda = 1/3Cs_l$, где C - теплоемкость единицы объема фононного газа, s - скорость звука в веществе, l - длина свободного пробега. Левая восходящая ветвь зависимости обусловлена увеличением числа фононов с ростом температуры, а правая нисходящая связана с ослабляющими фонон-фононным и другими видами рассеяния.

При низкой температуре, длина свободного пробега сопоставима со средней длиной свободного пробега, характеризующей рассеяние фононов на дефектах решетки, примесях или даже на торцах конечного образца. При достижении температуры, где начинается рост времени релаксации и, соответственно, длины свободного пробега фононов, теплопроводность решетки растет. Соответственно для диэлектриков при очень низких температурах теплопроводность $\lambda \sim T^3$, затем λ изменяется экспоненциально и достигается максимума. Далее с ростом температуры темп уменьшения спадает и заменяется медленным спаданием $\lambda \sim 1/T$ из-за увеличения числа рассеивающих фононов и соответствующему уменьшению средней длины свободного пробега

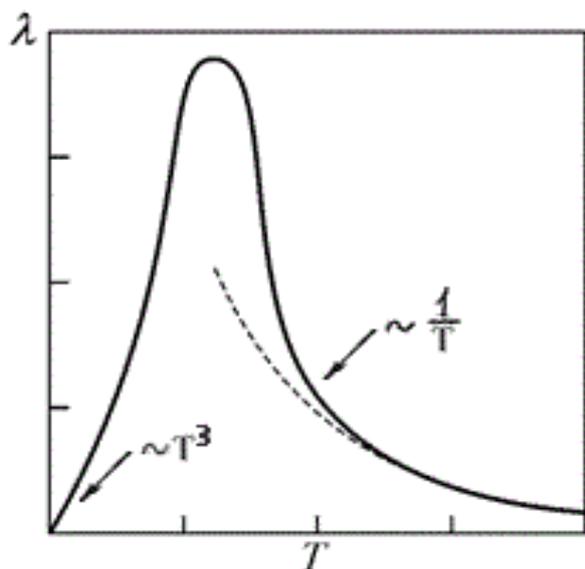


Рис. 6. Схематическая зависимость коэффициента теплопроводности от температуры для кристаллических диэлектриков

(рис. 6), что совпадает с полученными экспериментальными данными по исследованию температурной зависимости теплопроводности образцов TeO_2 , которые подтверждают уменьшение теплопроводности с ростом температуры.

Зависимости теплопроводности TeO_2 от температуры при различных давлениях показаны на рис. 7, 8.

Из-за низкой теплопроводности температурные градиенты в таблетке очень велики, в результате таблетки могут растрескиваться вследствие высоких термических напряжений. Растрескивание и образование полостей в таблетке из-за радиационных дефектов кристаллической решетки и накопления газообразных продуктов деления будет приводит к постепенному уменьшению теплопроводности, которая в конечном счете может снизиться более чем на порядок. Наблюдается, что с увеличением давления прессования теплопроводность TeO_2 увеличивается в зависимости от температуры на 10-14%, что будет приводить к повышению стойкости таблеток к растрескиванию.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

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

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки России (договор от "12" февраля 2013 г. № 02.G25.31.0015).

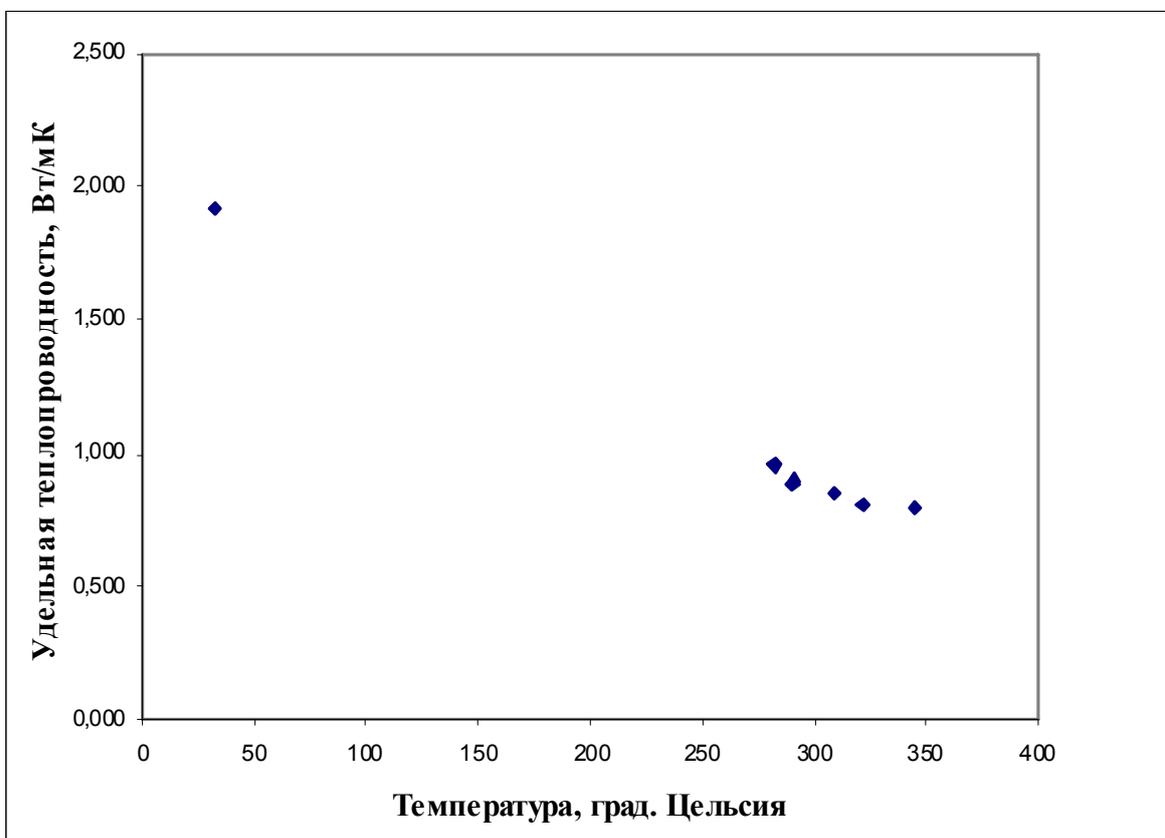


Рис. 7. Зависимость теплопроводность TeO_2 от температуры при давлении прессования 130 МПа

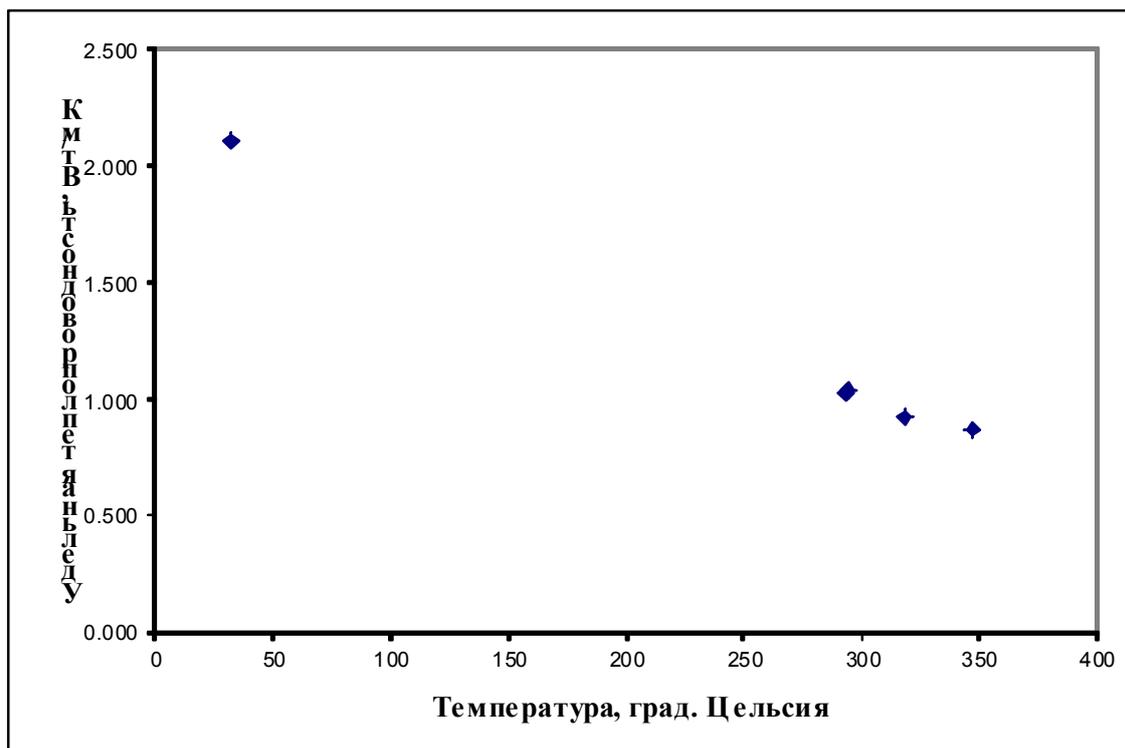


Рис. 8. Зависимость теплопроводность TeO_2 от температуры при давлении прессования 170 МПа

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Китарисов С.С., Либенсон Г.А. Порошковая металлургия. М.: Металлургия, 1980.
2. Химическая энциклопедия [Редкол.: Кнунянц И.Л. и др.]. М.: Советская энциклопедия, 1995. Т. 4. 639 с.
3. Справочник химика [редкол.: Никольский Б.П. и др.]. 33-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. Физикоомеханические свойства окислов. Справочник. М.: Металлургия. 1978.

INFLUENCE OF MANUFACTURING PARAMETERS ON THE MECHANICAL PROPERTIES AND THERMAL CONDUCTIVITY OF TABLETS TeO_2

© 2014 N.A. Bunakov, V.V. Svetukhin

Ulyanovsk State University

In this work tableting methods from tellurium oxide for assembly of cores of targets, and also questions of optimization of technological parameters for the purpose of increase in density of the baked tablets are considered. Influences of parameters of tableting on their structure, mechanical properties and thermal conductivity are studied.

Keywords: Tellurium oxide, iodum-131, methods of powder metallurgy, thermal conductivity.

Nikita Bunakov, Postgraduate, Research Engineer.

E-mail: na_bunakov@mail.com

Vyacheslav Svetukhin, Doctor of Science in Physics and Mathematics, Leading Researcher. E-mail: slava@sv.uwen.ru