

ИССЛЕДОВАНИЕ АДГЕЗИОННОГО СЛОЯ ПЛЕНКИ TeO_2 С ИНДЕНТИРОВАННОЙ ПЛАТИНОВОЙ ПОДЛОЖКОЙ ПОСЛЕ РАДИАЦИОННОЙ НАГРУЗКИ ДЕЙТРОНАМИ 13 МэВ

А.А. Гарапачкий¹⁾, П.Е. Троян²⁾

¹⁾Физико-технический институт Томского политехнического университета,
Томск, Россия, e-mail: garapatski@tpu.ru

²⁾Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники,
Томск, Россия, e-mail: suv@ms.tusur.ru

TeO_2 - мишени используют для получения радиоизотопов йода, применяемых в радиомедицине. В данной работе изучают влияние рифленой поверхности Pt-подложки на качество теплового контакта адгезионного слоя с материалом разных композиций TeO_2 и Al_2O_3 при бомбардировке мишени пучком дейтронов 13 МэВ током 20мкА. Рамановский спектр материала $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ до облучения имел размытый контур, что соответствует поликристаллическому составу или стеклу, после облучения спектр имеет четкие пики комбинационного рассеяния света (КРС), относящиеся к α -фазе. В спектрах КРС для TeO_2 , содержащих пики α - фазы, существенных изменений после облучения не наблюдалось. Однако в центральной части мишени образовалась стекловидная структура. Исследования показали хороший тепловой контакт TeO_2 с поверхностью Pt-подложки, обработанной предложенной технологией. Это позволяет обходиться без добавок Al_2O_3 и проводить облучение мишени без потерь TeO_2 .

Введение

При циклотронном производстве радиоактивные изотопы йода получают по реакциям $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$, $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$. Общее количество производимого ^{123}I или ^{124}I пропорционально току, в котором облучается мишень. Из-за большой энергии пучков бомбардирующих частиц, рассеянной в материале мишени (например, 300 Вт, при 20 μA , 15 MeV протонов или 275 Вт при 20 μA , 13 MeV), максимальный ток, в котором может быть облучена мишень, диктуют тепловые рабочие характеристики материала мишени непосредственно. Признаки несоответствия тепловых рабочих характеристик во время облучения проявляются присутствием летучих ^{123}I и/или TeO_2 [1,2], или в некоторых случаях, значительным плавлением и вытеканием дорогого материала мишени теллура [3].

Для обеспечения тепловых характеристик во время облучения мишени задняя поверхность подложки мишени охлаждается водяным потоком, и лобовая поверхность материала мишени теллура охлаждается гелием (или воздухом).

Химическая и физическая форма теллура оказывает влияние на термическую устойчивость облучаемой мишени. Несмотря на то, что TeO_2 имеет низкую теплопроводность (3 Вт/м *К) и температуру плавления -733 °С, для технологии имеет лучшие теплотехнические свойства по сравнению с металлическим теллуrom.

К мишенному материалу TeO_2 , как правило, добавляют 5-7 % массовой доли Al_2O_3 [3, 4] с целью: 1- усиления сцепления TeO_2 к Pt-подложке; 2- придания материалу мишени стекловидной твердой структуры, таким образом избавляясь от необходимости покрытия её фольгой, и 3 - увеличение однородности слоя материала мишени.

Однако добавка Al_2O_3 приводит к снижению сечений реакций ядерного синтеза радиоизотопов йода в мишенном материале. В связи с этим разработка мишеней без добавок актуальна.

Влияние индентированной поверхности Pt-подложки на качество теплового контакта адгезионного слоя с материалом разных композиций TeO_2 и Al_2O_3 при бомбардировке мишени пучком дейтронов 13 МэВ током 20мкА изучают в данной работе.

Основная часть

Мишень представляет собой платиновый диск толщиной 0,4 мм и диаметром 24 мм, в центре – лунка, в которую плавится $^{122}\text{TeO}_2$ [5].

Для снижения тепловой нагрузки на пленку TeO_2 необходимо ограничить рассеяние энергии дейтронов в ней. Радиационную толщину пленки TeO_2 выбирают равной $d = 112 \text{ мг/см}^2$, при которой поглощение энергии дейтронов происходит с 13 до 8 МэВ, а выход йода -123 составляет 99,4% от выхода из толстой мишени.

Адгезионные свойства подложки необходимо создавать уже с жидкорасплавленным TeO_2 . Для увеличения развитости поверхности и её лиофильности [6] на ней создают микроуглубления с интервалом 200 мкм в виде ячеек 100 x 100 мкм, глубиной 15 мкм, между которыми формируют взрыхленную поверхность в виде острий и пор с размерами от десятков нанометров до микрон (рис. 1).

В донной области при остывании расплава молекулы быстрее теряют подвижность, создавая условия формирования аморфной фазы, прочно удерживаясь в «микротраве» и в углублениях. В силовых полях капилляров образуется новая затравочная фаза - зародыш твердой фазы при кристаллизации. Слоем выше рост кристаллов происходит с центрами на вершинах и ребрах острий. Градиенты температурной и концентрационной неоднородности возникают не только вдоль, но и поперек направления роста кристалла. В результате выравнивания скоростей формирования вершин и ребер, длина и ширина кристаллов выравниваются.

В образцах с наполнителем при остывании расплава на частицах Al_2O_3 тоже зачинаются кри-

сталлы, но их хаотическое движение способствует образованию аморфной фазы. Образуется мелкозернистая или стекловидная структура (рис. 2).

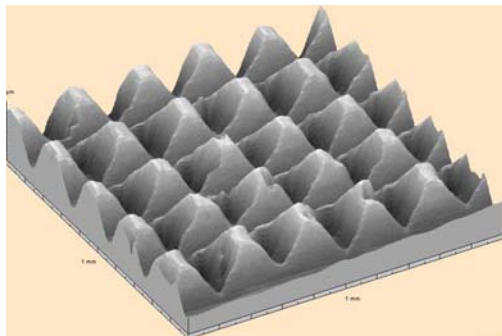


Рис. 1. Индентированная поверхность Pt-подложки.



Рис. 2. Вид края пленки $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ на индентированной платиновой подложке.

На мишени без добавок была сформирована структура с образованием пучков плотно спаянных по длине иглообразных гранёных структур, которые росли в длину из центра мишени через всю поверхность пленки TeO_2 . Направление роста преимущественно вдоль поверхности остывающего расплава. В результате твердая кристаллическая фаза в виде прожилок со средним сечением 30 мкм распределена в твердой аморфной фазе (рис. 3).



Рис. 3. Вид края пленки TeO_2 на поверхности платиновой подложки.

Эти две мишени были исполнены поочередно на одной подложке. Центральная часть подложки выполнена в форме тигля, т.е. полусферы, поэтому пленки мишенного материала TeO_2 и $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ имели толщину неравномерную с увеличением к центру. Из-за того, что расплавленный $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ имел большую текучесть и подложка лучше смачивалась, площадь пленки

получилась больше, а толщина в центре меньше на 20%.

Для изучения физико-химических процессов модификации структуры исходного материала мишени и расширения представлений об энергетическом состоянии молекул TeO_2 контактирующего слоя и центра мишени, а также для исследования возможности контроля качества адгезии (теплового контакта) по характеристикам оптических свойств TeO_2 измеряли спектры КРС.

Спектрометр AvA Raman -532 ТЕС имеет характеристики: длина волны лазера $\lambda = 532$ нм; размер лазерного пятна 25 мкм; спектральное разрешение около 8 см^{-1} .

Двуокись теллура существует в следующих модификациях: тетрагональная D_4^4 (и D_{4h}^{14} [7]) – парателлури́т (α-фаза), ортогональная D_{2h}^{15} – теллури́т (β-фаза), и сейчас выделяют ортогональную D_2^4 (γ-фаза) [9]. В результате исследования локального строения несколькими экспериментальными методиками (рентгеноспектральные, рамановская спектроскопия, нейтронная дифракция) выделяют три структурных TeO_n объекта: 1- тригональная бипирамида $[\text{TeO}_4]$ (tbp) - группа с двумя осевыми и двумя экваториальными кислородными атомами (третье экваториальное положение sp^3d гибридных орбиталей занято неподделенной парой); 2 - асимметричный многогранник TeO_{3+1} , в котором одна осевая связь Te-O сокращается, в то время как другая удлиняется; 3 - тригональная пирамида TeO_3 (tp) с тремя короткими интервалами Te-O.

КРС спектр материала $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ до облучения имел размытый контур (рис. 4а), что соответствует поликристаллическому составу или стеклу, после облучения спектр имеет четкие пики КРС, относящиеся к α- фазе (рис. 4б, в). В спектрах КРС для TeO_2 , содержащих пики α- фазы, существенных изменений после облучения не наблюдалось (рис. 4б, в). Однако в центральной части мишени образовалась стекловидная структура. Потерь TeO_2 не обнаружено.

Аппроксимация огибающей измеренных спектров модельными кривыми выделила пики смещения: 392, 480, 585, 650-660 и 760 см^{-1} .

Пик около 660 см^{-1} приписывают асимметричным колебаниям моста $\text{Te}-\text{O}-\text{Te}$, включая $[\text{TeO}_4]$, $[\text{TeO}_{3+1}]$ и $[\text{TeO}_3]$. Пики вибраций в области от 300 до 600 см^{-1} относят к колебаниям простых мостов $\text{Te}-\text{O}-\text{Te}$ и двойных мостов $\text{Te} < \text{O} > \text{Te}$ [7, 9]. Пик $\sim 430 \text{ см}^{-1}$ приписан валентному колебанию моста $\text{Te}-\text{O}-\text{Te}$ (растяжение) [7].

Обнаруженные в [8] характерные изменения в спектре КРС в области $\sim 450 \text{ см}^{-1}$ предполагалось отнести к β-фазе TeO_2 в контактом слое и принять за оценку качества адгезии. В данном эксперименте использовали другую Pt-подложку, поверхность которой обрабатывали другим алмазным индентором.

Присутствие пика со сдвигом 480 см^{-1} можно объяснить влиянием подложки. Замечена зависимость его амплитуды от места положения пятна лазера на мишени, например, в центре или на крае пленки TeO_2 . Сообщается о получении новых фаз TeO_2 , имеющих в КРС спектрах актив-

ность в области сдвигов $440\text{--}500\text{ см}^{-1}$, однако, контуры там размытые [9].

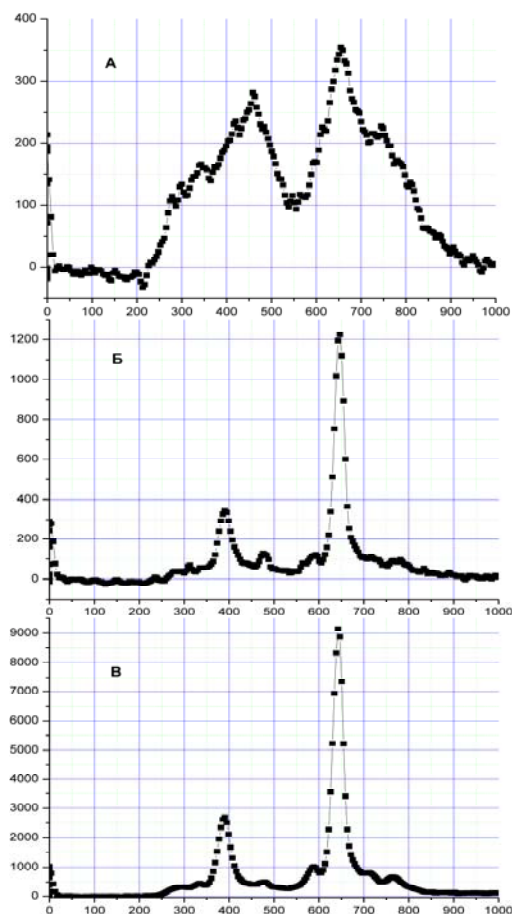


Рис. 4. КРС спектры пленки: а- $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ до облучения; б - $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ после облучения; в- TeO_2 до и после облучения.

Наблюдаемая интенсивность пика 480 см^{-1} может быть результатом усиления комбинационного рассеяния (УКР). Кроме того, в отдельных структурах на поверхности может возникнуть эффект локального усиления поля при падении на них электромагнитного поля, частота которого близка к частоте плазмонного резонанса образующих агрегаты частиц [10, 11]. При этом поле локализуется преимущественно в зазорах между

металлическими частицами, между которыми находится среда с определенной диэлектрической проницаемостью - ϵ_d .

Заключение

Индентированная поверхность Pt-подложки при условии полного смачивания расплавом TeO_2 усиливает сцепление с отвердевшей пленкой независимо от добавок. Материал $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ под действием бомбардировки дейтронами модифицируется к структуре материала TeO_2 . Исследования показали хороший тепловой контакт TeO_2 с поверхностью Pt-подложки, обработанной по предложенной технологии. Это позволяет обходиться без добавок Al_2O_3 и проводить облучение мишени дейтронами 13 МэВ током 20 мкА без потерь TeO_2 .

Авторы благодарят Головкова В.М. за содействие в проведении эксперимента.

Список литературы

1. Kondo K.; Lambrecht R. M.; Norton E. F.; Wolf A. // Cyclotron Isotopes and Radiopharmaceuticals—XXII. Improved Targetry and Radiochemistry for Production of ^{123}I and ^{124}I . - International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 5977. Vol 28, pp. 765- 771.
2. Qaim S.M.; Hohn A.; Bastian Th.; El-Azoney K.M.; Blessing G.; Spellerberg S.; Scholten B.; Coenen H.H. // Applied Radiation and Isotopes. – 2003. – 58. – P. 69–78.
3. Kudelin B.K.; Gromova E.A.; Gavrilina L.V.; Solin L. // Appl. Rad. Isot. – 2001. – 54. P. 383.
4. Sheh Y.; Koziorowski J.; Balatoni J.; Lom C.; Dahl J.R.; Finn R.D. // Radiochim. Acta. – 2000. – 88. – P. 169–173.
5. Агалаков Ю.В.; Большаков А.М.; Гарапачкий А.А.; Головков В.М.; Комов А.И.; Скуридин В.С. // Известия высших учебных заведений. Физика. – 2007. - №10/2 - С. 252.
6. De Gennes P.G. // Rev. Mod. Phys. – 1985. - 57. – P. 827-863.
7. Wyckoff E. W. Crystal Structure. – 1963. - Vol. I. - P. 255.
8. Гарапачкий А.А., Ахмедьянова А.Ф. // Известия высших учебных заведений. Физика. – 2009/ - Т. 52. - 11/2. - С. 419.
9. Mirgorodsky A.; Merle-Mejean T.; Frit B. // J. Phys. Chem. Solids. – 2000. – 61. – P. 501.
10. Полдугин В.И. // Успехи химии. - 2003. - 72. – С. 1027.
11. Shalaev V.M. // Phys.Reports. - 1996. - 272. - P. 61.

EXAMINATION OF ADHESION LAYER OF TeO_2 FILM WITH INDENTED PLATINUM SUBSTRATE AFTER RADIATION LOADING BY 13 MeV DEUTERONS

A.A. Garapatski¹, P.E. Troyan²

¹Tomsk Polytechnic University, Physicotechnical Institute

²Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics

In this work the influence of a corrugated surface of a Pt substrate on the quality of thermal contact of an adhesion layer with a material of different compositions of TeO_2 and Al_2O_3 when bombing a target by a 20 μA , 13.7 MeV deuteron beam has been studied. Before the irradiation a Raman spectrum of the $\text{TeO}_2+4\%\text{Al}_2\text{O}_3$ material had a fuzzy contour, what corresponds to a polycrystalline composition or glass, but after the irradiation the spectrum has distinct Raman peaks which relate to the α -phase. In Raman spectrums for TeO_2 , containing α -phase peaks, essential changes were not observed after the irradiation. However, the glassy structure was formed in the target's central part. Studies have shown good thermal contact of TeO_2 with the surface of a Pt substrate, processed by the offered technique. It allows to manage without addition of Al_2O_3 and to carry out the target irradiation without loss of TeO_2 .