



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 108780672 B

(45) 授权公告日 2022.03.01

(21) 申请号 201780013388.0

(22) 申请日 2017.04.20

(65) 同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 108780672 A

(43) 申请公布日 2018.11.09

(30) 优先权数据

2016-085301 2016.04.21 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日
2018.08.24

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2017/015932 2017.04.20

(87) PCT国际申请的公布数据

WO2017/183697 JA 2017.10.26

(73) 专利权人 株式会社钟化

地址 日本大阪府

(72) 发明人 村上睦明 多多见笃 立花正满

(74) 专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事
务所(普通合伙) 11277

代理人 刘新宇 李茂家

(51) Int.Cl.

G21K 5/08 (2006.01)

C01B 32/205 (2006.01)

C01B 32/21 (2006.01)

G21G 1/10 (2006.01)

G21G 4/08 (2006.01)

(56) 对比文件

JP 2013054889 A, 2013.03.21

JP 2013054889 A, 2013.03.21

WO 2015173098 A1, 2015.11.19

US 2015003576 A1, 2015.01.01

JP H09142820 A, 1997.06.03

JP H09142820 A, 1997.06.03

JP 2013216577 A, 2013.10.24

WO 2015045641 A1, 2015.04.02

US 2006104400 A1, 2006.05.18

JP 2008501612 A, 2008.01.24

CN 1826288 A, 2006.08.30

CN 103193221 A, 2013.07.10

CN 103582721 A, 2014.02.12

审查员 郭健

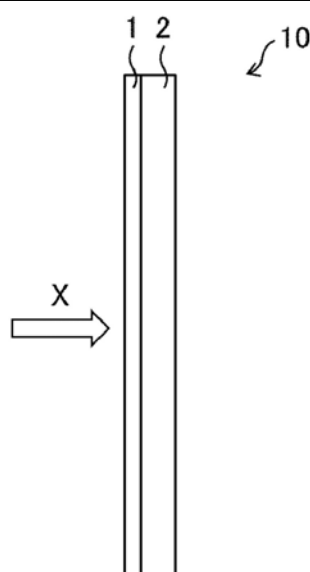
权利要求书1页 说明书11页 附图3页

(54) 发明名称

放射性同位素制造用支撑基板、放射性同位素制造用靶板、以及支撑基板的制造方法

(57) 摘要

本发明实现一种在放射性同位素制造上所用的具备充分的耐久性、耐热性且放射性活化程度能降低的放射性同位素制造用靶板。放射性同位素制造用靶板(10)中,对靶(1)进行支撑的支撑基板(2)具有石墨膜,石墨膜在膜面方向上的热导率为 $1200\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上,石墨膜的厚度为 $0.05\mu\text{m}$ 以上且 $100\mu\text{m}$ 以下。



1. 一种支撑基板, 是对被照射荷电粒子束的靶进行支撑的放射性同位素制造用支撑基板, 其特征在于:

具有1个或多个石墨膜, 该石墨膜以其膜面与荷电粒子束相交的方式配置;

各石墨膜在膜面方向上的热导率为 $1200\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以上;

各石墨膜的厚度为 $0.05\mu\text{m}$ 以上且 $50\mu\text{m}$ 以下,

所述石墨膜中, 膜面方向上的热导率为膜厚方向上的热导率的50倍以上。

2. 根据权利要求1所述的支撑基板, 其特征在于:

所述石墨膜在膜面方向上的电导率为 $12000\text{S}/\text{cm}$ 以上。

3. 根据权利要求1所述的支撑基板, 其特征在于:

所述石墨膜中, 膜面方向上的电导率为膜厚方向上的电导率的100倍以上。

4. 根据权利要求1所述的支撑基板, 其特征在于:

该支撑基板具有由多个所述石墨膜层叠而成的层叠体, 且该支撑基板的总体厚度为 $0.1\mu\text{m}$ 以上且 1mm 以下。

5. 根据权利要求1所述的支撑基板, 其特征在于:

所述石墨膜的密度为 $1.40\text{g}/\text{cm}^3$ 以上且 $2.26\text{g}/\text{cm}^3$ 以下。

6. 根据权利要求1所述的支撑基板, 其特征在于:

该支撑基板包含层叠于所述石墨膜的由金属构成的金属板。

7. 根据权利要求6所述的支撑基板, 其特征在于:

所述金属板具有冷却机构。

8. 一种放射性同位素制造用靶板, 其具备:

被照射荷电粒子束的靶、以及

对所述靶进行支撑的权利要求1~7中任一项所述的支撑基板。

9. 一种权利要求1~7任一项所述的支撑基板的制造方法, 是对被照射荷电粒子束的靶进行支撑的放射性同位素制造用支撑基板的制造方法,

该支撑基板的制造方法的特征在于: 通过对高分子膜进行煅烧来制作构成所述支撑基板的至少一部分的石墨膜。

10. 根据权利要求9所述的支撑基板制造方法, 其特征在于:

所述高分子膜的材料为耐热性芳族高分子。

11. 根据权利要求10所述的支撑基板制造方法, 其特征在于:

所述耐热性芳族高分子为芳族聚酰亚胺。

12. 根据权利要求9~11中任一项所述的支撑基板的制造方法, 其特征在于:

在不活泼气体中以 2400°C 以上的温度对所述高分子膜进行煅烧来进行石墨化。

放射性同位素制造用支撑基板、放射性同位素制造用靶板、以及支撑基板的制造方法

技术领域

[0001] 本发明涉及放射性同位素制造用支撑基板、放射性同位素制造用靶板、以及支撑基板的制造方法。

背景技术

[0002] 放射性同位素(RI)可通过中子反应堆及粒子加速器来制造。采用粒子加速器来制造时,若靶物质是固体,那么通常是使用将接受荷电粒子束照射的靶形成到支撑基板上而成的放射性同位素制造用靶板,来制造放射性同位素。即,使用回旋加速器等粒子加速器,向上述支撑基板上的靶照射质子等荷电粒子来使靶发生核反应,由此制造放射性同位素。另外,作为上述支撑基板材料,目前使用的是石墨、钛(Ti)、铝(Al)、哈伯箔(Haber foil)等。此外还有具备冷却机构的支撑基板,该冷却机构对因荷电粒子束的照射而发热的靶进行冷却。

[0003] 例如专利文献1揭示了一种基于齐拉德-查曼(Szilard-Chalmers)的原理来生成放射性核素的方法。具体而言,揭示了一种包含以下步骤的放射性核素生成方法:对含有靶核素物质的靶媒质照射中子来使靶核素物质中生成放射性核素,并使该放射性核素从靶核素物质中放出;将放出的该放射性核素捕集到以结晶学角度看不存在空晶格构造的碳系反跳捕获材料中。另外,关于所述碳系反跳捕获材料,该文献中例举了各向同性非晶质碳、石墨、石墨烯等。

[0004] 此外,专利文献2揭示了一种用以将放射性同位素从经过荷电粒子束照射后的靶分离出的方法。

[0005] 另外,专利文献3揭示了一种在放射性同位素的制作上所用的放射线照射对象物(靶)的制造技术。

[0006] 另外,专利文献4揭示了一种用以制造供正电子发射断层成像(PET:Positron Emission Tomography)所用的放射性同位素(RI)的放射性同位素制造装置。

[0007] 再之,专利文献5揭示了一种通过物理气相生长法将放射性同位素生成用金属膜(靶)形成到支撑基板上而成的放射性同位素生成用靶板。另外,作为支撑基板材料,该文献中例举了铜、银、铝、碳、陶瓷。

[0008] (现有技术文献)

[0009] 专利文献1:日本特表2013-525744号公报

[0010] 专利文献2:日本特表2004-535288号公报

[0011] 专利文献3:日本特表2008-501612号公报

[0012] 专利文献4:日本特开2013-238515号公报

[0013] 专利文献5:日本专利第2999381号说明书

发明内容

[0014] (发明所要解决的问题)

[0015] 然而,上述这种将靶形成到支撑基板上而成的以往的放射性同位素制造用靶板存在对荷电粒子束的耐久性・耐热性低的问题。

[0016] 荷电粒子束入射到靶中后,会在极短的前进距离内失去全部能量。而伴随这一现象,靶会发生大量的热(数百W/cm²)。因此,要求支撑靶的支撑基板对照射过来的荷电粒子束具备耐久性・耐热性。然而就以往用于支撑基板材料而言,很难说其对高能荷电粒子束具有充分的耐久性・耐热性。

[0017] 此外,尤其是若高能荷电粒子束的照射所引起的发热量极大,那么通常会将具备冷却机构(例如,供冷却水流动的流路)的金属板安设在放射性同位素制造用靶板上。并且,具备冷却机构的金属板的材料中会使用铝。铝有30万年的半衰期,且放射性活化度极强。发生了强烈的放射性活化的放射性同位素制造用靶板是无法供人操作的,因此难以进行高能荷电粒子束的照射和连续使用。

[0018] 本发明是鉴于上述问题而研发的,目的在于实现一种对荷电粒子束的照射具备充分的耐久性、耐热性且放射性活化程度能降低的放射性同位素制造用支撑基板、放射性同位素制造用靶板、以及支撑基板的制造方法。

[0019] (解决问题的手段)

[0020] 本发明一个方面的支撑基板是对被照射荷电粒子束的靶进行支撑的放射性同位素制造用支撑基板,其特征在于:具有1个或多个石墨膜,该石墨膜以其膜面与荷电粒子束相交的方式配置,各石墨膜在膜面方向上的热导率为1200W/(m・K)以上,各石墨膜的厚度为0.05μm以上且100μm以下。

[0021] 本发明一个方面的放射性同位素制造用靶板的特征在于具备:被照射荷电粒子束的靶、以及对所述靶进行支撑的上述支撑基板。

[0022] (发明效果)

[0023] 本发明的一个方面发挥如下效果:具备充分的耐久性、耐热性,且放射性活化度能够降低。

附图说明

[0024] 图1是本发明实施方式1的放射性同位素制造用靶板的结构的截面示意图。

[0025] 图2是基于Bethe公式的能量损失率与粒子动能之间关系的曲线图。

[0026] 图3是本发明实施方式2的放射性同位素制造用靶板的结构的截面示意图。

[0027] 图4是本发明实施方式3的放射性同位素制造用靶板的结构的截面示意图。

[0028] 图5是本发明实施方式4的放射性同位素制造用靶板的结构的截面示意图。

[0029] <附图标记说明>

[0030] 1 靶

[0031] 2、2A、2B、2C 支撑基板(放射性同位素制造用支撑基板)

[0032] 3 金属板

[0033] 3a 冷媒流路(冷却机构)

[0034] 10、10A、10B、10C 靶板(放射性同位素制造用靶板)

具体实施方式

[0035] 如上所述,作为对靶进行支撑的支撑基板,以往采用的是石墨、钛(Ti)、铝(Al)、哈伯箔等。尤其是石墨等碳材料,其由于放射性活化程度相对较低且真空下具有3000℃的耐热性而为理想的材料。以往,由石墨构成的碳膜是通过蒸镀及溅射等方法来制作的。对于经这些方法制成的碳膜,本发明人独自发现其有时无法耐受高能量荷电粒子束的照射,因此难以说其对高能量荷电粒子束具备充分的耐久性・耐热性。对此,本发明人为了研制出放射性活化程度低且对高能量荷电粒子束的照射具备充分的耐久性・耐热性的支撑基板,进行了锐意的研发。

[0036] 其结果是,通过使用具备特定特性且具有规定尺寸的石墨,而成功地研发出了一种放射性活化程度低且对高能量荷电粒子束的照射具备充分的耐久性・耐热性的支撑基板。具体而言,得出了以下新颖的技术认识:通过将石墨膜在膜面方向上的热导率控制在规定值以上,且将石墨膜的厚度控制在规定范围内,便能解决上述的问题。由此完成了本发明。

[0037] 通常,若减小石墨膜的厚度,其物理强度就会减弱。因此,减小石墨的厚度与提高对荷电粒子束照射的耐久性・耐热性是相互对立的事项。另外,以往的技术认识是:荷电粒子束对靶的照射会使支撑基板受到较大的热负荷,因此厚度薄的石墨膜是无法承受该热负荷的。再之,就膜厚例如为50μm以下的低厚度石墨膜而言,其制造上极难同时实现优越的热导率、电导率或耐弯曲性(耐折性)等各种特性。

[0038] 然而本发明人通过独自的反复研究,成功确立了厚度小且热导率等各特性优越的石墨膜的制造技术。此外,通过进一步深入研发,还惊人地得出了以下新颖的技术认识:该石墨膜不仅放射性活化程度能降低,还能够耐受荷电粒子束的照射所引起的热负荷。基于以上技术认识的本发明的技术构思推翻了现有技术认识,是无法根据现有技术认识来预见的,是本发明人独自完成的。

[0039] (实施方式1)

[0040] 以下,对本发明的一实施方式进行详细说明。图1是本实施方式的放射性同位素制造用靶板的结构的截面示意图。

[0041] 如图1所示,本实施方式的放射性同位素制造用靶板(以下简记为靶板)10具备靶1、以及对靶1进行支撑的支撑基板2。靶板10是供荷电粒子束X入射至靶1的膜面来使靶1产生放射性同位素的基板。这里,在使用本实施方式的放射性同位素制造用靶板的放射性同位素制造方案中,不包括利用所谓中子照射法的制造方案。因此,向靶1照射的荷电粒子束X不包括中子束。

[0042] (靶1)

[0043] 构成靶1的物质选自能够经荷电粒子束X照射而得到目标放射性同位素的元素。若荷电粒子为质子,那么可采用 ^{235}U 、 ^{68}Zn 、 ^{203}Tl 、 ^{201}Pb 、 ^{79}Br 、 ^{112}Cd 、 ^{74}Se 、 ^{50}Cr 、 ^{58}Fe 等多种靶物质来制造 ^{61}Cu 、 ^{63}Cu 、 ^{67}Ga 、 ^{82}Sr / $^{82\text{m}}\text{Rb}$ 、 ^{89}Zr 、 ^{124}I 、 ^{67}Cu 、 ^{125}I 、 ^{211}At 、 ^{225}Ac / ^{213}Bi 、 ^{99}Mo / $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{123}I 、 ^{111}In 、 ^{201}Tl 、 ^{67}Ga 等多种放射性同位素。这些放射性同位素广泛用于疾病的诊断、治疗。例如,制造 ^{67}Ga 时的核反应可记作 $^{68}\text{Zn}(p, 2n)$,制造 ^{201}Tl 时的核反应可记作 $^{203}\text{Tl}(p, 3n)^{201}\text{Pb} \rightarrow ^{201}\text{Tl}$ 。

[0044] 能适用于本实施方式的放射性同位素制造用靶板的荷电粒子不限是质子,也包括

例如Ca等各种荷电粒子(氘核),最佳的荷电粒子及靶物质可根据所要制造的放射性同位素来选定。这些荷电粒子与靶物质间的反应多种多样。对此,构成靶1的物质可以选自镧系元素、过渡金属。例如,想要获得的放射性同位素若是 ^{207}At ,那么可以选择 $^{\text{nat}}\text{Hf}$ 来作为构成靶1的物质,并照射作为荷电粒子束X的 $^{48}\text{Ca}^{11+}$ 射束。

[0045] (支撑基板2)

[0046] 支撑基板2是以膜面与荷电粒子束X相交的方式配置的石墨膜。构成支撑基板2的石墨膜只要在其膜面方向上的热导率为 $1200\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上且厚度为 $0.05\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下,则该石墨膜的其他方案无特别限定。该石墨膜即使具有 $0.05\mu\text{m}$ 以上且 $100\mu\text{m}$ 以下的较薄膜厚,也对荷电粒子束X的照射具备充分的耐久性・耐热性且具有高导热性,因此优选。这里所说的厚度是指支撑基板2的在荷电粒子束X透射方向上的尺寸。

[0047] 如上所述,支撑基板2是具有 $0.05\mu\text{m}$ 以上且 $100\mu\text{m}$ 以下的较薄膜厚的石墨膜,由于其热容量较小,因此能量损失低,从而放射性同位素的制造效率可提高。

[0048] 另外,通过使用对荷电粒子束X的照射具备充分的耐久性・耐热性的靶板10,就使得荷电粒子束X的照射强度的提升成为了可能,从而放射性同位素的大量生产成为了可能。

[0049] 另外,若要制作供PET所用的RI这种短半衰期放射性同位素,就需要迅速将该放射性同位素从靶板10分离。而若支撑基板2及其周围的部件发生了放射性活化,那么从具备加速器的放射性同位素制造装置中将靶板10取出的操作员就有受辐射的风险。另外,这些部件若发生了放射性活化,那么该放射性废料的处理等也将成为问题。因此,现有技术中未能提出将放射性同位素从核反应结束后的靶板10分离的最佳方法。

[0050] 而根据本实施方式,由于不仅放射性活化程度低,还对高能量荷电粒子束的照射具备充分的耐久性・耐热性且具有高导热性,因此可容易地从具备加速器的放射性同位素制造装置中取出靶板10。因此,通过本实施方式,能容易地将放射性同位素从核反应结束后的靶板10分离。

[0051] (石墨膜的制造方法)

[0052] 本实施方式中的石墨膜的制造方法并无特别限定,例如可举出通过对高分子膜进行煅烧等热处理来制作石墨膜的方法。具体而言,本实施方式的一例石墨膜制造方法包含对芳族聚酰亚胺膜进行碳化的碳化工序、以及对碳化后的芳族聚酰亚胺膜进行石墨化的石墨化工序。

[0053] <碳化工序>

[0054] 碳化工序中,在减压下或氮气中对作为起始物料的芳族聚酰亚胺膜进行预热处理来实施碳化。关于碳化的热处理温度,优选以至少 500°C 以上的温度,更优选以 600°C 以上的温度,最优选以 700°C 以上的温度进行热处理。碳化处理过程中,为了不使作为起始物料的高分子膜起皱,也可在不导致膜破损的程度上,沿膜的厚度方向施加压力或沿与膜面平行的方向施加牵拉张力。

[0055] <石墨化工序>

[0056] 石墨化工序中,可以将碳化后的聚酰亚胺膜暂时取出并转移至石墨化炉,然后再进行石墨化,也可以连续地进行碳化和石墨化。石墨化在减压下或不活泼气体中进行,作为不活泼气体,以氩气、氦气为佳。关于热处理温度(煅烧温度),优选加热到 2400°C 以上,更优选加热到 2600°C 以上,进而优选加热到 2800°C 以上来进行处理。这里,石墨化工序中既可以

沿膜的厚度方向施加压力,也可以沿与膜面平行的方向施加牵拉张力。

[0057] 通过上述的方法,能够得到具有良好的石墨结晶构造且导热性优越的石墨膜。

[0058] 本实施方式中使用的高分子膜优选是耐热性芳族高分子,例如是选自以下中至少1种的高分子膜:芳族聚酰胺、芳族聚酰亚胺、聚喹啉、聚对苯乙炔、聚恶二唑、聚苯并咪唑、聚苯并恶唑、聚苯并噻唑、聚喹啉二酮、聚苯并恶唑酮、聚喹唑酮、苯并咪唑苯并菲咯啉(benzoimidazobenzophenanthroline)梯形聚合物、聚苯并双噻唑、聚苯并双恶唑、聚苯并双咪唑、聚噻唑、以及它们的衍生物。作为本实施方式的石墨膜的原料膜,尤其优选芳族聚酰亚胺膜。

[0059] (石墨膜在其膜面方向上的热导率)

[0060] 本实施方式的石墨膜在其膜面方向上的热导率为 $1200\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上,优选为 $1400\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上,更优选为 $1600\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上,进而优选为 $1800\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上。

[0061] 采用膜面方向上的热导率为 $1200\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上的石墨膜,就能获得具有更高散热性的石墨层叠体。此外,膜面方向上的热导率为 $1200\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上的石墨膜具有相比于金属材料(例如铜、铝等)的3倍以上导热性。

[0062] 另外,石墨膜优选具有如下各向异性(取向性):膜面方向上的热导率为膜厚方向上的热导率的50倍以上。更优选具有该倍数为100倍以上的各向异性。

[0063] 石墨膜在其膜面方向上的热导率通过下式(1)来算出。

[0064] $A = \alpha \times d \times C_p \cdots (1)$

[0065] 其中,A表示石墨膜在其膜面方向上的热导率, α 表示石墨膜在其膜面方向上的热扩散率,d表示石墨膜的密度, C_p 表示石墨膜的比热容。这里,石墨膜在其膜面方向上的密度、热扩散率、及比热容通过下述的方法来求取。

[0066] 对切成 $100\text{mm} \times 100\text{mm}$ 状的石墨膜样本的重量及厚度进行测定,然后用测得的重量值除以算出的体积值($100\text{mm} \times 100\text{mm} \times \text{厚度}$)来算出石墨膜的密度。

[0067] 使用SII Nano-Technology株式会社制造的作为热分析系统的差示扫描热量仪DSC220CU,在以 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速度从 20°C 升温至 260°C 的升温条件下,测定石墨膜的比热容。

[0068] 关于石墨膜在其膜厚方向上的热导率,可以将上式(1)中的 α 替换成石墨膜在其膜厚方向上的热扩散率来同样地用式(1)计算。

[0069] 这里,石墨膜的厚度若超过 $3\mu\text{m}$,那么可以使用基于闪光法的市售热扩散率测定装置(例如ULVAC理工株式会社的“Laser Pit”)来测定石墨膜在其膜面方向上的热扩散率。例如可以在 20°C 环境中以 10Hz 的激光照射频率,对切成 $4\text{mm} \times 40\text{mm}$ 状的石墨膜样本进行测定。另一方面,石墨膜的厚度若为 $3\mu\text{m}$ 以下,则难以通过市售装置来精确测定石墨膜在其膜面方向上的热扩散率,因此通过新研发的周期式加热法来测定。

[0070] 石墨膜在其膜厚方向上的热扩散率通过脉冲激光加热法来测定。该方法中,对膜的单面照射激光来加热后,测定膜背面的温度响应(温度变化),由此得出至温度达到一定温度时为止的时间(t)的半值时间($t_{1/2}$),然后通过下式(2)来进行计算。

[0071] [数1]

$$[0072] \quad \alpha = \frac{d^2}{\tau_0} = 0.1388 \times \frac{d^2}{t_{1/2}} \quad (2)$$

[0073] 式(2)中, α 为热扩散率, τ_0 为热扩散时间, d 为试样厚度, $t_{1/2}$ 为半值时间,0.1388为所用装置的装置常数。

[0074] (石墨膜的厚度)

[0075] 本实施方式中的石墨膜的厚度为0.05 μm 以上且100 μm 以下,更优选为0.1 μm 以上且50 μm 以下,尤其优选为0.5 μm 以上且25 μm 以下。采用如此厚度时,即使在射束的照射下,支撑基板2也不易发生放射性活化,因此优选。

[0076] 石墨膜的厚度通过以下的方法来测定:使用厚度计(HEIDENHAIN株式会社制造;HEIDENH:AIN-CERTO),在25℃的恒温室内对切成50mm $\times$ 50mm状的石墨膜样本上的任意10处的厚度进行测定,并算出这些测定值的平均值来作为石墨膜的厚度。

[0077] (石墨膜在其膜面方向上的电导率)

[0078] 本实施方式中的石墨膜在其膜面方向上的电导率并无特别限定,优选为12000S/cm以上,更优选为14000S/cm以上,进而优选为16000S/cm以上,进而优选为18000S/cm以上,最优选为20000S/cm以上。

[0079] 另外,石墨膜优选具有如下的各向异性(取向性):膜面方向上的电导率为膜厚方向上的电导率的100倍以上。

[0080] 石墨膜的电导率是运用四探针法并通过施加恒电流(例如株式会社三菱化学ANALYTECH制造的Loresta GP)来测定的。

[0081] (石墨膜的密度)

[0082] 本实施方式中的石墨膜的密度并无特别限定,优选为1.40g/cm³以上,更优选为1.60g/cm³以上,进而优选为1.80g/cm³以上,进而优选为2.00g/cm³以上,进而优选为2.10g/cm³以上。石墨膜的密度若为1.40g/cm³以上,则石墨膜本身的自我支撑性、机械强度特性就优越,因此优选。

[0083] 另外,石墨膜的密度越高,其与荷电粒子束发生相互作用的比率就越高,因此可作为降能器(degrader)发挥优越效果。另外,就高密度的石墨膜而言,由于所构成的石墨层间不存在空隙,因此热导率有增高倾向。石墨膜的密度若较低,其对荷电粒子束的减速效率就差,而且因所构成的石墨层间的空气层的影响,热导率也会下降,故欠佳。一般认为有空气层即空洞部分时,导热性会变差,从而易发生热积蓄,或者位于空洞部分的空气层会因加热下的温度上升而发生膨胀。因此,低密度的石墨膜易发生劣化・破损。而石墨膜的密度若较高,那么荷电粒子束在穿过石墨膜时就不易发生散射。因此,即使层叠了石墨膜,也是高密度石墨膜才不易发生荷电粒子束的散射。出于这些理由,优选较大的石墨膜密度。具体优选为1.40g/cm³以上,更优选为1.60g/cm³以上,进而优选为1.80g/cm³以上,进而优选为2.00g/cm³以上,进而优选为2.10g/cm³以上。此外,关于石墨膜密度的上限,石墨膜密度可以为2.26g/cm³(理论值)以下,进而为2.24g/cm³以下。

[0084] 石墨膜的密度按以下方式算出:对切成100mm $\times$ 100mm状的石墨膜样本的重量及厚度进行测定,然后用测得的重量值除以算出的体积值(100mm $\times$ 100mm $\times$ 厚度)。

[0085] (石墨膜的MIT耐弯曲性)

[0086] 石墨膜在MIT耐弯曲试验下的弯曲次数优选为500次以上,更优选为1000次以上,进而优选为5000次以上,尤其优选为10000次以上。

[0087] 石墨膜的MIT耐弯曲试验按以下方式进行:冲裁3片1.5 $\times$ 10cm的试验片;用东洋精

机株式会社制造的MIT耐揉疲劳试验机-型号D,在100gf (0.98N) 的试验负荷、90次/分钟的速度、2mm的弯折夹具曲率半径R的条件下进行试验;以左右弯折角度均为135度的方式在23℃环境中进行弯折,并测定至断裂为止的弯折次数。

[0088] (本实施方式中荷电粒子束B的能量)

[0089] 对于靶板10,荷电粒子束X会穿过由石墨膜构成的支撑基板2。穿过支撑基板2的荷电粒子束的能量相对较低。靶物质(这里指支撑基板2)给荷电粒子带来的能量损失率(阻滞能力)可通过以下Bethe公式(3)来表达。

[0090] [数2]

$$[0091] \quad S_{col} = -\frac{4\pi e^4 z^2 N}{mv^2} Z \left[\ln \frac{2mv^2}{I(1-\beta^2)} - \beta^2 \right] \quad (3)$$

[0092] 其中,e表示电子的基本电荷,m表示电子的质量,v表示电子的速度,z表示入射粒子的核电荷数,Z表示靶物质的原子序数,N表示靶物质单位体积内的原子数,I表示靶物质的平均激发势, β 在设c为光速的情况下表示 v/c 。

[0093] 图2是基于Bethe公式(3)的能量损失率与粒子动能之间关系的曲线图。如图2所示,关于靶物质给荷电粒子带来的能量损失率(阻滞能力),能量损失率在粒子动能较低的A至B区间增大且在B处为最大,在B至C区间与“ I/v^2 ”成比例地减小且在C处为最小,最后在C至D区间因Bethe公式(3)中对数项的效果而平缓增大。

[0094] 向本实施方式的靶板10入射的荷电粒子束X是处于能量范围B~C的荷电粒子束,其能量相对较低。荷电粒子束X在B处的能量为MeV级(例如1MeV),而在C处的能量为GeV级(例如3GeV)。就靶物质来看,B处的能量损失率比C处的能量损失率高100倍左右。

[0095] 因此,在荷电粒子数相同的情况下,与通过加速来得到处于能量范围C~D(例如3GeV以上的能量)的荷电粒子束的加速器中所用的衰减部件相比,本实施方式的靶板10要求具备其100倍的耐久性。由于荷电粒子数随各种加速器的工作目的而不同,因此并非一定要具备100倍的耐久性。但本实施方式的靶板10的主要用途上所要求的能量区域为1~100MeV,因此从这一点看,显然是要求具备大幅超越3GeV以上高能量加速器的高耐久性。

[0096] 在如此苛刻条件下,本实施方式的靶板10中的上述石墨膜即使为上述的厚度,也能满足上述要求。

[0097] 本实施方式的靶板10尤其对1~100MeV能量区域中的以下2个能量区域内的荷电粒子束B具有充分的耐久性・耐热性:最适于制造放射性医药品的18~30MeV能量区域、以及最适于制造PET用RI的10MeV以下能量区域。

[0098] (靶板10的制造方法)

[0099] 在由石墨膜构成的支撑基板2上形成靶1的方法并无特别限定,可根据靶1的特性来适当选择。例如可通过物理气相生长法,在支撑基板2上形成靶1。物理气相生长法是:通过物理作用使含有靶1原子的固态物质成为原子、分子或簇态,并将之供应到设有支撑基板2的空间,由此在支撑基板2上形成靶1薄膜的技术。本实施方式中所能运用的物理气相生长法为公知的方法既可,例如可举出真空蒸镀、离子镀覆、群集离子束镀覆、溅镀、离子簇蒸镀、磁控管溅射法等。

[0100] (实施方式2)

[0101] 以下结合图3来说明本发明的其他实施方式。这里,为便于说明,对于功能与前述实施方式中说明过的部件相同的部件,赋予同一附图标记并省略其说明。

[0102] 图3是本实施方式的靶板10A的结构截面示意图。如图3所示,本实施方式的靶板10A与前述实施方式1的不同点在于:支撑基板2A为石墨膜21的层叠体。若荷电粒子束X的照射所引起的发热量极大,则可以如本实施方式这样,用石墨膜21的层叠体来构成支撑基板2A。

[0103] 石墨膜21的膜厚为 $0.05\mu\text{m}$ 以上且 $100\mu\text{m}$ 以下。可通过对多个石墨膜21进行加压层叠来制作支撑基板2A。像这样,支撑基板2A由石墨膜21的层叠体所构成,因此其对荷电粒子束X的照射的耐久性・耐热性得到增强。

[0104] 由石墨膜21的层叠体构成的支撑基板2A的膜厚可以为 $1\mu\text{m}$ 以上且 1mm 以下,更优选为 $10\mu\text{m}$ 以上且 $500\mu\text{m}$ 以下,尤其优选为 $30\mu\text{m}$ 以上且 $300\mu\text{m}$ 以下。

[0105] (实施方式3)

[0106] 以下结合图4来说明本发明的另一实施方式。另外,为便于说明,对于功能与前述实施方式中说明过的部件相同的部件,赋予同一附图标记并省略其说明。

[0107] 图4是本实施方式的靶板10B的结构截面示意图。本实施方式的靶板10B与前述实施方式1的不同点在于:在支撑基板2的与靶1侧相反的一侧的面上,形成有金属板3。若荷电粒子束X的照射所引起的发热量极大,则可以如本实施方式这样,设置用以对靶1及支撑基板2进行冷却的金属板3。

[0108] 构成金属板3的材料由高导热性的金属构成,例如可举出铝。通过如此设置金属板3,靶1内的热量得以匀化,从而核反应效率可提高。

[0109] 另外,由石墨膜构成支撑基板2能够防止金属板3的放射性活化。因此,操作员能够在靶1内的核反应结束后将靶1及支撑基板2从金属板3上拆下,并迅速实施RI的分离操作。由此,RI的分离操作的效率可提高。

[0110] 此外,如图4所示,金属板3内部也可设有作为冷却机构的冷媒流路3a。另外,作为流入冷媒流路3a的冷媒,可使用冷却水等高导热性的液体。

[0111] 在金属板3不具备上述冷却机构的情况下,靶1、支撑基板2及金属板3的合计膜厚可以为 $10\mu\text{m}$ 以上且 10mm 以下,更优选为 $100\mu\text{m}$ 以上且 7mm 以下,尤其优选为 $200\mu\text{m}$ 以上且 5mm 以下。

[0112] 另外,在金属板3具备上述冷却机构的情况下,靶1、支撑基板2及金属板3的合计膜厚可以为 1mm 以上且 5cm 以下,更优选为 2mm 以上且 4cm 以下,尤其优选为 5mm 以上且 3cm 以下。

[0113] (实施方式4)

[0114] 以下结合图5来说明本发明的又一实施方式。另外,为便于说明,对于功能与前述实施方式中说明过的部件相同的部件,赋予同一附图标记并省略其说明。

[0115] 图5是本实施方式的靶板10C的结构截面示意图。本实施方式的靶板10C与前述实施方式1及3的不同点在于:支撑基板2设置得比靶1更靠荷电粒子束X入射侧。即,本实施方式的靶板10C中的靶1和支撑基板2间的位置关系与实施方式1的靶板10中的靶1和支撑基板2间的位置关系相反。

[0116] 换言之,前述实施方式的靶板10B是金属板3直接层叠在支撑基板2上而成的结构。与此相比,本实施方式的靶板10C与前述实施方式3的不同点在于:金属板3隔着靶1而间接

层叠于支撑基板2。

[0117] 在由石墨膜构成的支撑基板2的膜厚极薄的情况下,荷电粒子束X穿过支撑基板2,从而靶1发生核反应来生成放射性同位素。像这样,本实施方式的靶板10C中,荷电粒子束X可穿过支撑基板2而到达靶1,因此也发挥与前述实施方式1相同的效果。

[0118] 靶板10C中的支撑基板2的膜厚为荷电粒子束X能够穿过的膜厚既可,优选为0.001 μm 以上且10 μm 以下,更优选为0.05 μm 以上且5 μm 以下,尤其优选为0.1 μm 以上且2 μm 以下。

[0119] 另外,本发明的靶板并不限于前述实施方式1~3的方案,例如也可采用靶被由石墨构成的2片支撑基板所夹持的方案。

[0120] 此外,虽然在前述实施方式1~3中,靶是形成在支撑基板上的固态物质,但也可以例如是诸如靶水的液态。当靶为如此的液态时,由石墨膜构成的支撑基板由于具有可挠性,因而例如也可构成为供容纳由液体组成的靶的盒体状。

[0121] 本发明并不限于上述各实施方式,可以在权利要求所示的范围内进行各种变更,适当地组合不同实施方式中各自披露的技术手段而得到的实施方式也包含在本发明的技术范围内。

[0122] 总结)

[0123] 本发明一个方面的支撑基板是对被照射荷电粒子束的靶进行支撑的放射性同位素制造用支撑基板,其特征在于:具有1个或多个石墨膜,该石墨膜以其膜面与荷电粒子束相交的方式配置;各石墨膜在膜面方向上的热导率为1200W/(m·K)以上;各石墨膜的厚度为0.05 μm 以上且100 μm 以下。

[0124] 根据上述方案,支撑基板具有1个或多个石墨膜,该石墨膜以其膜面与荷电粒子束相交的方式配置,各石墨膜在膜面方向上的热导率为1200W/(m·K)以上,各石墨膜的厚度为0.05 μm 以上且100 μm 以下。因此能实现一种对荷电粒子束的照射具备充分的耐久性、耐热性且放射性活化程度能降低的放射性同位素制造用支撑基板。

[0125] 本发明一实施方式的支撑基板中优选如下方案:所述石墨膜中,膜面方向上的热导率为膜厚方向上的热导率的50倍以上。如此构成本发明一个方面的支撑基板的石墨膜具有高取向性、热物性高的各向异性。

[0126] 本发明一个方面的支撑基板中优选如下方案:所述石墨膜在膜面方向上的电导率为12000S/cm以上。

[0127] 本发明一个方面的支撑基板中优选如下方案:所述石墨膜中,膜面方向上的电导率为膜厚方向上的电导率的100倍以上。

[0128] 本发明一个方面的支撑基板也可如下方案:该支撑基板具有由多个所述石墨膜层叠而成的层叠体,且该支撑基板的总体厚度为0.1 μm 以上且1mm以下。由此,对荷电粒子束照射的耐久性、耐热性可提高。

[0129] 本发明一个方面的支撑基板中优选如下方案:所述石墨膜的密度为1.40g/cm³以上且2.26g/cm³以下。

[0130] 本发明一个方面的支撑基板也可包含层叠于所述石墨膜的由金属构成的金属板。这里所谓的“层叠于所述石墨膜的由金属构成的金属板”是指:直接层叠在所述石墨膜上的金属板、或者隔着某种层而间接层叠于所述石墨膜上的金属板。

[0131] 本发明一个方面的支撑基板中优选如下方案:所述金属板具有冷却机构。由此,靶

上发生的热得以匀化,从而核反应效率可提高。

[0132] 另外,本发明一个方面的放射性同位素制造用靶板的特征在于具备:被照射荷电粒子束的靶、以及对所述靶进行支撑的上述支撑基板。

[0133] 根据上述方案,能实现一种对荷电粒子束的照射具备充分的耐久性、耐热性且放射性活化程度能降低的放射性同位素制造用靶板。

[0134] 另外,本发明一个方面的支撑基板的制造方法是对被照射荷电粒子束的靶进行支撑的放射性同位素制造用支撑基板的制造方法,其特征在于:通过对高分子膜进行煅烧来制作构成所述支撑基板的至少一部分的石墨膜。

[0135] 根据上述方案,能实现一种对荷电粒子束的照射具备充分的耐久性、耐热性且放射性活化程度能降低的放射性同位素制造用支撑基板的制造方法。

[0136] 本发明一个方面的支撑基板的制造方法中优选如下方案:所述高分子膜的材料为耐热性芳族高分子。

[0137] 本发明一实施方式的支撑基板的制造方法中尤其优选如下方案:所述耐热性芳族高分子为芳族聚酰亚胺。

[0138] 本发明一个方面的支撑基板的制造方法中优选如下方案:在不活泼气体中以2400℃以上的温度对所述高分子膜进行煅烧来进行石墨化。

[0139] (实施例)

[0140] 以下示出实施例来进一步详述本发明的实施方式。显然,本发明并不限于以下的实施例,且关于细节部分,其毫无疑问能构成为各种形态。

[0141] 放射性同位素制造用支撑基板的制作)

[0142] 通过高分子煅烧法,制作了由石墨膜构成的支撑基板。

[0143] 首先,将由作为酸二酐的均苯四甲酸二酐(PMDA)与作为二胺的4,4'-二氨基二苯醚(ODA)及对苯二胺(PDA)所混合而成的混合物作为原料,获得了包含芳族聚酰亚胺的高分子膜。将该高分子膜在不活泼气体中以3000℃进行煅烧来对芳族聚酰亚胺进行石墨化(graphitization),由此得到了厚1.6μm的石墨膜。

[0144] 得到的石墨膜在其膜面方向上的热导率为1900W/m·K,在其厚度方向上的热导率为8W/m·K。

[0145] 另外,得到的石墨膜在其膜面方向上的电导率24000S/cm,在其厚度方向上的电导率为10S/cm。

[0146] (放射性同位素制造用靶板的制作及RI的制造)

[0147] (实施例1)

[0148] 将作为对靶进行支撑的支撑基板的1.6μm厚石墨膜切成规定的尺寸,并将切取的石墨膜固定到了专用的框架上。另外,将固定有石墨膜的框架安装到了30MeV回旋加速装置(ACSI TR-30)上。另外,通过真空溅射法,在磁控管溅射装置内将作为靶材料的⁶⁸Zn膜形成到了石墨膜上。

[0149] (比较例1)

[0150] 将作为对靶进行支撑的支撑基板的2μm厚钛膜切割成规定的大小,并将切取的该钛膜固定到了专用的框架上。接着,将固定有钛膜的该框架安装到了30MeV回旋加速装置(ACSI TR-30)上。之后,通过真空溅射法,在磁控管溅射装置内在将作为靶的⁶⁸Zn膜形成到

了钛膜上。

[0151] 使用上述回旋加速装置,向实施例1及比较例1的放射性同位素制造用靶板照射了质子束,通过频谱测定,确认到了放射性同位素⁶⁷Ga的生成。另外,使用辐射温度计(HAZAMA测器株式会社制造)测定了各靶板在射束照射过程中的温度变化。就比较例1及实施例1的放射性同位素制造用靶板,测定了它们对于射束照射的温度响应特性,结果发现:比较例1的放射性同位素制造用靶板随着射束的持续照射而温度连续上升,与此相比,实施例1的放射性同位素制造用靶板并未随射束的持续照射而发生温度上升。另外,关于从射束开始照射时起、至放射性同位素制造用靶板达到温度平衡为止的时间,实施例1的放射性同位素制造用靶板的该时间为比较例1的放射性同位素制造用靶板的约1/2。此外,关于从射束照射结束时起、至放射性同位素制造用靶板达到温度平衡为止的时间,实施例1的放射性同位素制造用靶板的该时间为比较例1的放射性同位素制造用靶板的1/3。

[0152] 根据以上结果,显然可知实施例1中所用的石墨膜能毫无问题地用于RI的制造。另外,显然可知实施例1中所用的石墨膜在耐久性上优越于以往用作放射性同位素制造用基板的钛膜,能接受射束的连续照射,还足以能耐受高强度的射束。

[0153] (产业上的可利用性)

[0154] 本发明能用于放射性同位素的制作。

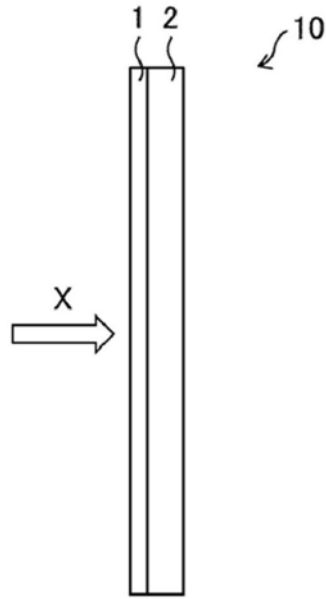


图1

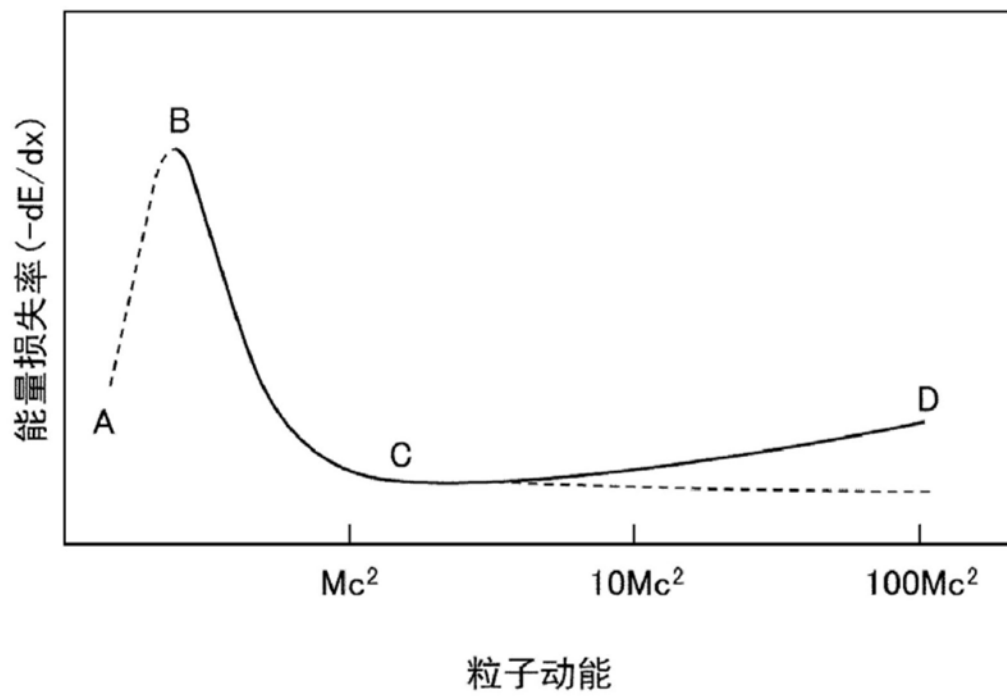


图2

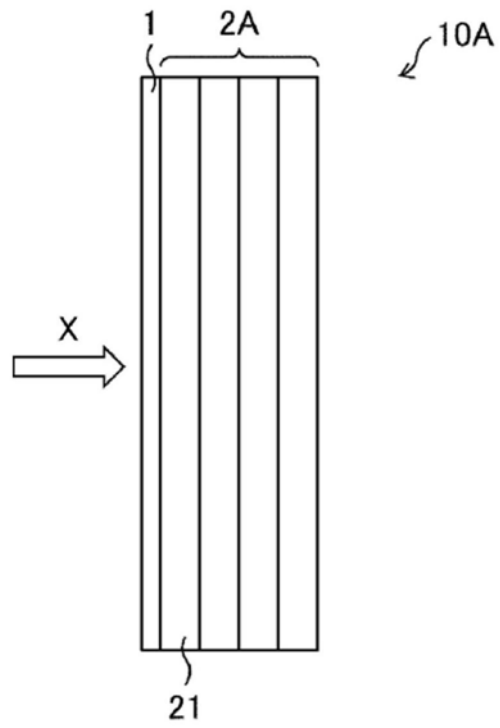


图3

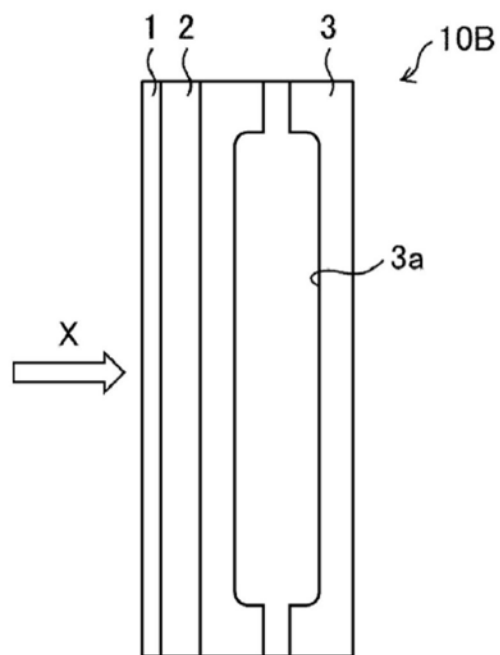


图4

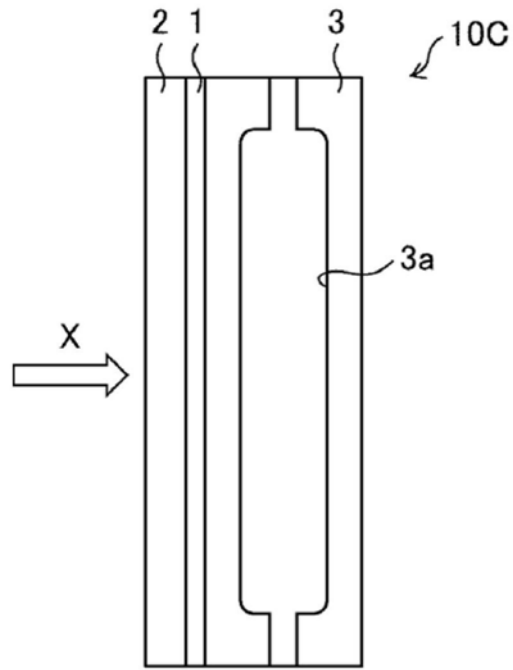


图5