(19)中华人民共和国国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 107210077 A
(43)申请公布日 2017.09.26

(21)申请号 201680007796.0

(22)申请日 2016.01.19

(30)优先权数据
PCT/EP2015/051842 2015.01.29 EP
PCT/EP2015/051844 2015.01.29 EP

(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2017.07.28

(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/EP2016/050970 2016.01.19

(87)PCT国际申请的公布数据
WO2016/120120 EN 2016.08.04

(71)申请人 阿海珐有限公司
地址 德国埃朗根

(72)发明人 比阿特里斯·舒斯特

(74)专利代理机构 北京信慧永光知识产权代理有限责任公司 11290
代理人 杨国强 张淑珍

(51)Int.Cl.
G21G 1/02(2006.01)
H05H 6/00(2006.01)

权利要求书3页 说明书8页

(54)发明名称

用于产生放射性同位素的辐照靶、其制备方法以及该辐照靶的用途

(57)摘要

本发明提供一种经烧结的稀土金属氧化物靶，所述靶用于在核动力反应堆的仪表管中产生放射性同位素，其中，所述经烧结的靶具有理论密度至少90％的密度，并且其中，所述经烧结的靶以500μg/g至2000μg/g的量含有铬，并以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg和/或Ca。通过提供稀土金属氧化物粉末，将该稀土金属氧化物粉末与铬氧化物共混，干法造粒并将粉末固结在模具中以形成球形生坯，以及对处于固相的生坯进行烧结以形成球形氧化镱靶，来制备经烧结的靶。

CN 107210077 A

1.一种用于气动驱动的放射性同位素连续生成系统中的经烧结的稀土金属氧化物靶，其中，在运行中在核动力反应堆的仪表管中对所述靶进行辐照，其特征在于，所述经烧结的靶具备用于耐受机械约束和撞击的机械完整性的机械特征和化学特征，所述机械约束和撞击是在插入到所述仪表管、辐照和辐照后从所述仪表管取出期间由于气动驱动而产生的机械约束和撞击。

2.根据权利要求1所述的靶，其中，所述经烧结的稀土金属靶以500μg/g至2000μg/g的量含有铬，并以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg和/或Ca。

3.根据权利要求1或2所述的靶，其中，所述经烧结的稀土金属靶以500μg/g至8000μg/g、优选500μg/g至6000μg/g的量含有铝。

4.根据权利要求1-4中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的稀土金属靶包含由通式R_2O_3表示的稀土金属氧化物，其中R是选自于以下所组成的组的稀土金属：Nd、Sm、Y、Dy、Ho、Er、Tm、Yb和Lu，优选Sm、Y、Ho或Yb。

5.根据权利要求4所述的靶，其中，所述经烧结的稀土金属靶由以1000μg/g至6000μg/g的量掺杂铬、以1000μg/g至6000μg/g的量掺杂Mg和/或Ca后的稀土金属氧化物组成，所述靶以500μg/g至8000μg/g的量含有铝并含有不可避免的杂质。

6.一种用于在核动力反应堆的仪表管中产生放射性同位素的经烧结的稀土金属氧化物靶，其中，所述经烧结的靶具有理论密度至少90％的密度，并且其中，所述经烧结的靶以500μg/g至2000μg/g的量含有铬、以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg和/或Ca。

7.根据权利要求6所述的靶，其中，所述稀土金属氧化物由通式R_2O_3表示，其中R是选自于由以下所组成的组中的稀土金属：Nd、Sm、Y、Dy、Ho、Er、Tm、Yb和Lu。

8.根据权利要求7所述的靶，其中，所述稀土金属是Sm、Y、Ho或Yb，优选Yb-176或Yb-168。

9.根据权利要求4-8中任一项所述的靶，其中，所述稀土金属是单同位素的。

10.根据权利要求1-9中任一项所述的靶，其中，所述靶以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg。

11.根据权利要求1-10中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶以500μg/g至8000μg/g、优选500μg/g至6000μg/g的量含有铝。

12.根据权利要求1-11中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶具有理论密度至少92％的密度。

13.根据权利要求1-12中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶具有小于10％、优选小于5％的孔隙度。

14.根据权利要求1-13中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶具有孔径小于100μm、优选小于80μm、更优选小于70μm的孔。

15.根据权利要求1-14中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶具有35μm以上、优选40μm以上的平均粒度。

16.根据权利要求1-15中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶为球形，并具有1mm-5mm、优选1mm-3mm的直径。

17.根据权利要求1-16中任一项所述的靶，其中，所述经烧结的靶耐受10bar的气动输送压强和/或10m/s的冲击速度。

18.制备权利要求1-17中任一项所述的辐照靶的方法，所述方法包括如下步骤：

-提供由稀土金属氧化物、铬氧化物和粘合剂组成的粉末共混物，其中，所述铬氧化物以1000μg/g-3000μg/g的量存在于所述粉末共混物；

-对所述粉末共混物进行预固结，形成粒度小于500μm、优选小于450μm的颗粒，烧结经造粒的所述粉末共混物以形成生坯；或者

-通过在转筒中或转盘上团聚，对所述粉末共混物进行制粒，形成生坯；以及

-将所述生坯置于包含Mg和/或Ca的支架上，在至少1700℃的温度下烧结，形成经烧结的稀土金属氧化物靶，所述稀土金属氧化物靶具有理论密度至少90％的烧结密度。

19.根据权利要求18所述的方法，其中，所述稀土金属氧化物粉末具有大于99％、更优选大于99.9％/TREO的纯度。

20.根据权利要求18或19所述的方法，其中，所述粘合剂是脂肪酸的金属盐、更优选脂肪酸的铝盐或钙盐、更优选硬脂酸铝、最优选二硬脂酸铝。

21.根据权利要求18-20中任一项所述的方法，其中，以0.01-0.1wt％、更优选0.02wt％-0.07wt％的量将所述粘合剂加入所述粉末共混物。

22.根据权利要求18-21中任一项所述的方法，其中，使用10kN至50kN、优选25kN至35kN的压力将所述粉末共混物预固结，形成预固结的块状物或丸粒。

23.根据权利要求22所述的方法，其中，对所述预固结的块状物或丸粒进行研磨并过筛，形成所述颗粒。

24.根据权利要求18-23中任一项所述的方法，其中，以5wt％-10wt％、优选5wt％-7wt％的量将所述粘合剂进一步地加入至所述颗粒。

25.根据权利要求18-24中任一项所述的方法，其中，对所述颗粒进行压制模塑，优选借助液压冲压，在0.1kN-10kN、优选0.5kN-2kN的压力下进行所述压制模塑。

26.根据权利要求18-25中任一项所述的方法，其中，在包含氢气和非活性气体的还原性气氛下对所述生坯进行烧结。

27.根据权利要求18-26中任一项所述的方法，其中，所述经烧结的靶中，Ca和/或Mg的总量不超过6000μg/g，和/或Al的总量不超过8000μg/g。

28.权利要求1-17中任一项所述的经烧结的稀土金属氧化物靶在产能运行时在商业核动力反应堆的仪表管中产生放射性同位素方面的用途。

29.根据权利要求28所述的用途，其中，所述商业核动力反应堆包含在运行的核动力反应容器中生成放射性同位素的系统，所述系统包含辐照靶驱动子系统，所述辐照靶驱动子系统具有产生加压气流的设施，所述加压气流与根据权利要求1-17中任一项所述的经烧结的辐照靶相互作用，驱动所述靶从靶储存子系统进入所述仪表管并在辐照后驱动所述靶从所述仪表管进入移除子系统。

30.根据权利要求28或29所述的用途，其中，在运行的核反应堆中产生放射性同位素的方法包括：借助加压空气将所述经烧结的靶插入到延伸至反应堆芯的仪表管中，所述加压空气优选处于约7bar-30bar的压强下，并在运行时将所述经烧结的靶暴露于在所述核反应堆中遇到的中子通量一段预定的时间，使得所述经烧结的靶充分转化为放射性同位素，以及从所述仪表管中移除所述经烧结的靶和所产生放射性同位素。

31.根据权利要求28-30中任一项所述的用途，其中，所述稀土金属氧化物是氧化镱，所

述放射性同位素是Lu-177。

用于产生放射性同位素的辐照靶、其制备方法以及该辐照靶的用途

技术领域

[0001] 本发明涉及用于在商业核动力反应堆的仪表管中产生放射性同位素的辐照靶以及制备该辐照靶的方法。

背景技术

[0002] 放射性同位素可以应用于不同领域，比如工业、研究、农业和医药。通常通过将合适的靶材料在研究型核反应堆或回旋加速器中的中子通量中暴露适当的时间，来产生人造放射性同位素。研究型核反应堆的辐照座(irradiation site)昂贵，并且由于研究型反应堆因寿命原因而停堆，辐照座在今后将会变得更加稀缺。

[0003] EP 2 093 773 A2涉及使用商业核动力反应堆的仪表管产生放射性同位素的方法和系统，该方法包括：选择至少一种具有已知中子截面的辐照靶；将辐照靶插入到核反应堆的仪表管中，该仪表管延伸到反应堆中以便在运行时辐照靶暴露于在核反应堆中遇到的中子通量，当辐照靶暴露于在核反应堆中遇到的中子通量时，辐照靶充分转化为放射性同位素。

[0004] EP 2 093 773 A2公开的生成放射性同位素的系统包含另外的子系统，例如辐照靶驱动子系统、辐照靶储存和插入/移除子系统，这些系统需要与已建成的商业核动力反应堆的剩余可用空间相匹配。辐照靶驱动子系统为机械性，包括用于将辐照靶定位于仪表管轴向位置一段时间的驱动齿轮，该时间相当于基于运行核反应堆的轴向中子通量曲线，以轴向位置对应的通量水平将全部的辐照靶充分地转化为放射性同位素所需的时间量；以及从仪表管中移除辐照靶和所产生的放射性同位素。大致呈球形的辐照靶一般可以是中空的，并且包括转化成有用的气体、液体和/或固体放射性同位素的液体、气体和/或固体材料。靶材料周围的壳体可具有在暴露于中子通量时可忽略的物理变化。或者，辐照靶一般可以是固体的，并且由暴露于运行的商业核反应堆中存在的中子通量时转化为有用的放射性同位素的材料制成。

[0005] EP 2 093 773 A2中公开的生成放射性同位素的方法和系统可通过使用商业核动力反应堆的仪表管来激活辐照靶，提供放射性同位素的补充来源。然而，由于需要另外的主要为机械性的子系统，该子系统需要被安装入现有的商业核动力反应堆，且球形辐照靶的生产成本在经济上是难以承受的，该方法和系统经济上并未优化且技术上难以实施。

[0006] EP1 336 596 B1公开了由通式R_2O_3表示的透明的经烧结的稀土金属氧化物体，其中R是包括Y、Dy、Ho、Er、Tm、Yb和Lu的组中的至少一种元素。通过提供粘合剂和高纯度稀土金属氧化物材料粉末(具有99.9％以上的纯度，以金属重量计Al的含量为5wtppm-100wtppm，以金属重量计Si的含量为10wt-ppm以下)的混合物来制备烧结体，从而制备模制体，该模制体具有理论密度58％以上的生坯密度。通过热处理来去除粘合剂，并且将模制体在氢气或非活性气体气氛中或在真空中、在1450℃至1700℃的温度下烧结0.5小时以上。添加Al作为烧结助剂，并且通过小心地控制使得烧结体具有2μm至20μm的平均粒度。

[0007] US 8 679 998 B2公开了一种用于半导体制造装置的耐腐蚀构件。将纯度至少为99.9％的Yb_2O_3原料在200kgf/cm^2(19.6MPa)的压强下进行单轴压力成型，以得到直径约为35mm、厚度约为10mm的圆盘状压坯。将该压坯放入用于焙烧的石墨模具中。使用热压法在1800℃的温度、氩气气氛下焙烧至少4小时，得到用于半导体制造装置的耐腐蚀构件。焙烧时的压强为200kgf/cm^2(19.6MPa)。所得Yb_2O_3烧结体具有0.2％的开孔孔隙度。

[0008] US 2004/254418 A1公开了用于对肿瘤或癌症区域进行处理的封装在生物相容性胶囊中的Yb-169放射源。该放射源为大幅度浓缩Yb-168的镱产生，并通过暴露于中子通量激活，从而含有显著比率的Yb-169。该Yb放射源包含粉末状的镱或镱氧化物，所述粉末状的镱或氧化镱被压制成固体形式，形成具有小于2mm^3体积的丸粒。可通过烧结或热等静压法使得粉末状的镱氧化物形成丸粒。丸粒可进一步包含选自于如下的一种或多种材料：铝、铜、钒、镍、铁、钛、硅、碳、氧及上述物质通过混合、化合或合铸而与镱组合的合金或化合物。

[0009] 上述方法一般提供适用于特定应用(例如耐腐蚀性、光学透明性或封装的放射性短程治疗源)的经烧结的稀土金属氧化物体。然而，通过这些方法制造的烧结体都不具有用于在商业核动力反应堆的仪表管系统中产生放射性同位素的辐照靶所需的性质。

发明内容

[0010] 期望通过提供一种放射性同位素生成系统来给出解决上述问题的方案，该同位素生成系统基于更安全的辐照靶驱动方案，且能够以对已装入一些商业核动力反应堆且安全性得到确认的现有测量系统进行小改动的方式实施。

[0011] 本发明的一个目的是提供合适的靶，所述靶可以用作通过暴露于商用核动力反应堆中的中子通量而产生预定放射性同位素的前体，并且同时具有能够承受以气动方式运行的放射性同位素生成系统中的特定条件的机械特征。

[0012] 本发明的进一步的目的是提供一种生产所述辐照靶的方法，所述方法性价比高并且适合于批量生产。

[0013] 根据本发明，所述目的通过根据权利要求1所述的辐照靶和根据权利要求13所述的生产辐照靶的方法来实现。

[0014] 在从属权利要求中给出了本发明的优选实施方式，所述优选实施方式可以彼此自由组合。

[0015] 本发明的辐照靶具有适用于商业上现有的球体测量系统的小尺寸，并且也满足耐压性、耐温性和抗剪切性方面的要求，从而其在插入到球体测量系统并经由加压空气输送通过反应堆芯时足够稳定。此外，能够提供具有光滑表面的靶，从而避免仪表管磨损。另外，辐照靶具有使其有效产生放射性同位素的化学纯度。

[0016] 在第一方面，本发明涉及一种用于气动驱动的放射性同位素生成系统中的经烧结的稀土金属氧化物靶，其中，在运行中在核动力反应堆的仪表管中对所述靶进行辐照，其特征在于，经烧结的靶具备用于耐受机械约束和撞击的机械完整性的机械特征和化学特征，所述机械约束和撞击是在插入到所述仪表管、辐照和辐照后从所述仪表管取出期间由于气动驱动而产生的机械约束和撞击。

[0017] 因此，本发明的靶旨在用于在运行的核反应堆容器中生成放射性同位素的系统，该系统包含辐照靶驱动子系统，该子系统具有产生加压气流的设施，所述加压气流与辐照

靶相互作用，驱动该靶从靶储存子系统进入仪表管并在辐照后驱动其从仪表管进入移除子系统。

[0018] 优选地，经烧结的稀土金属氧化物靶以500μg/g至2000μg/g的量含有铬，并以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg和/或Ca。

[0019] 同样优选地，经烧结的稀土金属氧化物靶以500μg/g至8000μg/g、优选500μg/g至6000μg/g的量含有铝。

[0020] 在优选的实施方式中，经烧结的稀土金属氧化物靶由稀土金属氧化物组成，所述稀土金属氧化物由通式R_2O_3表示，其中R是选自于以下所组成的组的稀土金属：Nd、Sm、Y、Dy、Ho、Er、Tm、Yb和Lu，优选Sm、Y、Ho或Yb，其中，该稀土金属氧化物以1000μg/g至6000μg/g的量掺杂铬、以1000μg/g至6000μg/g的量掺杂Mg和/或Ca，所述靶以500μg/g至8000μg/g的量含有铝并含有不可避免的杂质。

[0021] 在进一步的方面，本发明涉及用于在核动力反应堆的仪表管中产生放射性同位素的经烧结的稀土金属氧化物靶，其中，该经烧结的靶具有理论密度至少90％的密度，并且其中，该经烧结的靶以500μg/g至2000μg/g的量含有铬、以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg和/或Ca。

[0022] 发明人出乎意料的发现，使用控制含量的铬作为烧结助剂为经烧结的稀土金属氧化物靶提供足够的机械稳定性，从而该靶能够承受商业核反应堆芯处以及在输送穿过芯内探头测量系统或球体测量系统的仪表管时的严苛条件。虽然不希望被理论所限，发明人预料的是，在稀土金属氧化物中添加铬以及少量的镁和/或钙可提高烧结时稀土金属氧化物的粒度，并降低开孔孔隙度。其它烧结助剂(例如氧化铝)也可获得高的烧结密度，然而，证明其在经烧结的稀土金属氧化物靶的机械稳定性方面存在不足。因此，在也可存在少量的此类其它烧结助剂的同时，需要添加控制量的铬来赋予经烧结的稀土金属氧化物靶机械稳定性。

[0023] 根据经烧结的靶的优选实施方式，稀土金属氧化物由通式R_2O_3表示，其中R是选自于由以下所组成的组中的稀土金属：Nd、Sm、Y、Dy、Ho、Er、Tm、Yb和Lu。

[0024] 更优选地，稀土金属氧化物R_2O_3中的稀土金属R是Sm、Y、Ho或Yb，优选对于产生Lu-177而言有用的Yb-176或者可用于产生Yb-169的Yb-168。

[0025] 最优选地，稀土金属氧化物中的稀土金属是单同位素的(monoisotopic)。这保证了所期望的放射性同位素的高产率，并减少了纯化工作和成本。

[0026] 在优选的实施方式中，经烧结的靶以1000μg/g至6000μg/g的量含有Mg。也可用钙代替全部或部分的镁。发现钙和镁有效地提高经烧结的稀土金属氧化物靶的粒度。然而，如果Ca和/或Mg的量超过6000μg/g，经烧结的靶的机械强度可能降低。进而发现，仅使用Ca和/或Mg不使得经烧结的靶具有在商业反应堆的仪表管系统中使用的足够的机械稳定性。

[0027] 铝化合物也可用作稀土金属氧化物烧结中的烧结助剂，并可形成在经烧结的稀土金属氧化物的晶界处沉积的混合氧化物相。少量的此类混合氧化物相的存在也可增加经烧结的靶的机械强度。

[0028] 优选地，基于经烧结的稀土金属氧化物靶的重量，经烧结的靶以500μg/g至8000μg/g、优选6000μg/g以下的量含有铝。金属铝的含量超过8000μg/g将干扰经烧结的靶的机械稳定性和/或其产生放射性同位素的进一步用途。

[0029] 最优选地，除不可避免的杂质外，经烧结的靶由稀土金属氧化物、500μg/g至2000μg/g量的铬、1000μg/g至6000μg/g的量的Mg和/或Ca以及任选地500μg/g至8000μg/g的量的铝组成。

[0030] 优选地，经烧结的靶具有理论密度至少92％的密度。同样优选地，烧结密度可为理论密度的92％-98％、更优选理论密度的92％-95％。更高的烧结密度要求更为严苛的烧结条件，因此较不优选。可借助流体静力测量法来确定烧结密度。

[0031] 在进一步的实施方式中，经烧结的靶具有小于10％、优选小于5％的孔隙度。将孔隙度控制在最多10％、优选最多5％提高了经烧结的靶的抗机械冲击性。

[0032] 优选地，孔的最大孔径为小于100μm、更优选小于80μm、更优选小于70μm。

[0033] 经烧结的靶的平均粒度优选为35μm以上、最优选40μm以上。同样优选地，平均粒径可为35μm至约80μm。经烧结的稀土金属氧化物的单个晶粒可具有250μm、优选最多300μm的粒度。发明人发现，该给定范围的粒度更佳地为经烧结的靶提供足够的硬度和机械强度，以承受以气动方式运行的球体测量系统中的冲击条件。

[0034] 经烧结的靶可具有使其有利地被插入并输送通过商业核反应堆的仪表管的任何形状。优选地，经烧结的靶具有圆形或球形的形状，更优选为球状。

[0035] 优选地，经烧结的靶具有1mm-5mm、优选为1mm-3mm的直径。应当理解的是，烧结涉及高达约30％的收缩。因此，对生坯尺寸进行选择，从而在烧结时收缩而得到的经烧结的靶具有用于插入到商业球体测量系统的预定直径。

[0036] 优选地，根据本发明的靶耐受在商业球体测量系统中使用的10bar的气动入口压强和/或10m/s的冲击速度。此外，由于靶已经经历高的烧结温度，应理解的是，经烧结的靶能够承受运行的商业核反应堆芯中存在的约400℃的工艺温度。

[0037] 在本发明的进一步的方面，制备用于在核动力反应堆的仪表管中产生放射性同位素的辐照靶的方法包含如下步骤：

[0038] -提供包含稀土金属氧化物、铬氧化物和粘合剂的粉末共混物，其中，铬氧化物以1000μg/g-3000μg/g的量存在于所述粉末共混物；

[0039] -对粉末共混物进行预固结，形成粒度小于500μm的颗粒，烧结经造粒的粉末共混物以形成生坯；或者

[0040] -通过在转筒中或转盘上团聚，对粉末共混物进行制粒以形成生坯；以及

[0041] -将生坯置于包含Mg和/或Ca的支架上，在至少1700℃的温度下烧结，形成经烧结的稀土金属氧化物靶，该稀土金属氧化物靶具有理论密度至少90％的烧结密度。

[0042] 本发明采取已知的制造烧结陶瓷、干法造粒或粉末团聚技术工艺，因此能够利用可商购的设备(包括合适的模具、冲压设备和烧结设备)实施。干法造粒和压制模塑还允许提供具有各种形状(包括圆形或球状)和尺寸的靶，这有助于在现有的用于球体测量系统的仪表管中使用。因此，由于合适的放射性同位素前体靶的批量生产是可行的，可将制备辐照靶的成本保持在低水平。就生产具有所需化学纯度的多种不同的靶而言，所述方法也是可调整的也是有用的。除此以外，发现经烧结的靶是机械性稳定的，特别地，即便在核反应堆芯存在的高达400℃的温度下，该靶对在仪表管内使用加压空气的输送也具有耐受性。

[0043] 根据优选实施方式，粉末共混物中的稀土金属氧化物由通式R_2O_3表示，其中R是选自于由以下所组成的组中的稀土金属：Nd、Sm、Y、Dy、Ho、Er、Tm、Yb和Lu。

[0044] 优选地，稀土金属氧化物的粉末具有大于99％、更优选大于99.9％/TREO(TREO＝总稀土氧化物)、或甚至大于99.99％的纯度。发明人预料的是，不存在中子捕获杂质(如B、Cd、Gd)对于将经烧结的靶进一步用作放射性同位素的前体而言是有益的。

[0045] 最优选地，稀土金属氧化物粉末为富含浓缩度>99％的Yb-176的镱氧化物。

[0046] 粉末共混物中的稀土金属氧化物可具有5μm-50μm的平均粒度。粒度的分布优选为：从d50＝10μm、d100＝30μm至d50＝25μm、d100＝50μm。可压实的稀土金属氧化物粉末可从ITM Isotopen Technologie München AG购得。

[0047] 将粉末共混物中铬氧化物的量小心控制在基于稀土金属氧化物重量，1000μg/g-3000μg/g。铬氧化物的量小于1000μg/g不能实质上提高经烧结的稀土金属氧化物靶的机械稳定性。使用超过3000μg/g的铬氧化物的量并未显示出任何进一步的有益效果。

[0048] 粉末共混物中的粘合剂可为在陶瓷粉末烧结工艺中称为润滑剂的任何化合物。优选地，粘合剂是脂肪酸的金属盐，更优选脂肪酸的铝盐或钙盐、更优选硬脂酸铝、最优选二硬脂酸铝。

[0049] 更优选地，以0.01-0.1wt％、更优选0.02wt％-0.07wt％的量将粘合剂加入粉末。

[0050] 最优选地，除不可避免的杂质外，粉末共混物由稀土金属氧化物、铬氧化物和粘合剂组成。

[0051] 对于制备经烧结的靶的生坯，优选对粉末共混物进行干法造粒压制。可在高压下摇动或使用高剪切混合器造粒机使得初始的粉末粒团聚。优选地，使用重型压片机，在10kN至50kN、优选25kN至35kN的压力下实施粉末共混物的预固结，以形成大的片状物或块状物，或者使用辊压机，在两个辊子之间挤压粉末共混物，以生成带状物或丸粒。

[0052] 随后通过低剪切研磨对预固结的块状物或丸粒进行研磨并过筛，形成粒度小于500μm、优选小于450μm的颗粒。如果颗粒的粒度超过500μm，难以实现颗粒的进一步固结。

[0053] 优选地，以5wt％-10wt％、优选5wt％-7wt％的量将粘合剂进一步地加入至预固结的颗粒。

[0054] 如果粘合剂含有钙、镁或铝，控制造粒过程中使用的粘合剂的总量使得不超过基于经烧结的稀土金属氧化物靶的总重，6000μg/g量的Ca和/或Mg，和/或8000μg/g量的Al。

[0055] 随后通过压制模塑对预固结的颗粒进行固结，形成经烧结的稀土金属氧化物靶的生坯。优选地，生坯具有圆形或球形的形状，更优选为球状。术语“球状”意味着坯体能够滚动，但并不必须具有完美球体的形式。

[0056] 优选地，对预固结的颗粒的压制模塑优选可使用本领域技术人员知晓的可商购设备，在0.1kN-10kN、优选0.5kN-2kN的压力下，借助液压冲压进行。

[0057] 模具可由硬化钢制成，以避免生坯在固结期间从模具材料中吸收杂质。

[0058] 优选地，模塑后的生坯的生坯密度最高为理论密度的65％、更优选为理论密度的55％-65％。高生坯密度有助于经固结的生坯的自动化加工。

[0059] 任选地，可对圆形或球形生坯进行抛光来改善其球度(sphericity)或圆度(roundness)。

[0060] 在另一方法中，可通过粉末团聚形成圆形或球形的生坯。粉末团聚技术为制造压实球体领域的技术人员所知晓，综述文献N.Clausen,G.Petzow,“Kugelherstellung durch Pulveragglomeration”,Z.f.Werkstofftechnik 3(1973)，第148-156页公开了标准的团聚

方法以及相关的物理参数。用于粉末团聚的转筒已经在例如EP 0 887 102A2中公开。

[0061] 优选地，借助在转筒中或造粒盘上团聚，对包含稀土金属氧化物、铬氧化物和粘合剂或由其组成的粉末共混物进行制粒。

[0062] 更优选地，在实施制粒步骤时将粘合剂加入氧化物粉末共混物，优选通过将粘合剂的水性溶液或悬浊液喷洒在粉末表面进行。也可提供包含粘合剂的粉末共混物，并通过在转筒中或造粒盘上团聚对粉末共混物进行制粒。

[0063] 经制粒的生坯的生坯密度优选为理论密度的至少30％、更优选为理论密度的40％、还优选理论密度的30％-50％。该生坯密度对于方便对经制粒的生坯进行自动化加工而言是足够的。

[0064] 在烧结步骤中，优选将生坯置于烧结温度下，所述烧结温度为稀土金属氧化物的固相线温度的70％至80％。更优选地，烧结温度为1700℃至1850℃、更为优选1750℃至1850℃。发明人发现，该范围内的烧结温度适用于将大多数稀土金属氧化物烧结至高烧结密度，所述高烧结密度为理论密度的至少90％。

[0065] 优选地，将生坯置于烧结温度并烧结4小时至24小时的时间，优选在大气压下进行。

[0066] 根据优选的实施方式，在包含氢气和非活性气体(例如氮气和/或氩气)的混合气的还原性气氛中对生坯进行烧结。

[0067] 虽然较不优选，也可以在包含氧气和非活性气体(例如氮气和/或氩气)的混合气的氧化性气氛中对生坯进行烧结。

[0068] 在烧结前，可通过将生坯在400℃-700℃的温度下加热0.5h-1h来实施脱脂。

[0069] 优选地，在烧结时将生坯放置于支架上并任选地对生坯进行脱脂，所述支架包含MgO和/或CaO、优选MgO，或者由MgO和/或CaO、优选MgO组成。随后在烧结生坯时少量MgO和CaO被吸收，形成在稀土金属氧化物的晶界处沉积的混合氧化物相。混合氧化物相可帮助晶粒生长，并提高经烧结的靶的机械强度。

[0070] 任选地，可对经烧结的稀土金属氧化物靶进行抛光或磨光，以除去表面残留物并改善其表面粗糙度。这种烧结后处理可以降低在高压下插入时经烧结的靶对仪表管的磨损。

[0071] 根据本发明的进一步方面，经烧结的稀土金属氧化物靶用于在产能运行(energy producing operation)时在核动力反应堆的仪表管中产生一种或多种放射性同位素。在产生放射性同位素的方法中，借助加压空气(优选处于约7bar至30bar的压强)将经烧结的靶插入到延伸至反应堆芯的仪表管中，并在运行时将经烧结的靶暴露于在核反应堆中遇到的中子通量一段预定的时间，使得经烧结的靶充分转化为放射性同位素，以及从仪表管中移除经烧结的靶以及所产生放射性同位素。

[0072] 在运行的核反应堆容器中产生放射性同位素的系统包含辐照靶驱动子系统，该子系统具有产生加压气流的设施，所述加压气流与经烧结的辐照靶相互作用，驱动该靶从靶储存子系统进入仪表管并在辐照后驱动其从仪表管进入移除子系统。优选地，稀土金属氧化物为氧化镱-176，所期望的放射性同位素是Lu-177。当暴露于中子通量后，例如像欧洲专利EP 2 546 839 A1(以引用方式并入本文)所公开的，将经烧结的靶溶于酸，提取Lu-177。Lu-177是在癌症治疗和医学成像方面具有特定应用的放射性同位素。

[0073] 根据如下的具体实施方式的描述，将最好地理解本发明的构建和操作方法以及进一步的目的及其优势。

具体实施方式

[0074] 制备经烧结的氧化镱靶

[0075] 通过提供氧化镱粉末、将氧化以粉末与铬氧化物粉末共混、干法造粒、在模具中固结粉末以形成球形的生坯以及在固相中烧结生坯以形成球形的氧化镱靶，来制备经烧结的氧化镱靶。

[0076] 所使用的初始氧化镱粉末是单同位素Yb-176氧化物，具有大于99％/TREO的纯度，并具有以下规格参数：

[0077]

Yb_2O_3/TREO(％最小值)	99.9
TREO(％最小值)	99
灼烧减量(％最大值)	1
稀土杂质	％最大值
Tb_4O_7/TREO	0001
Dy_2O_3/TREO	0.001
Ho_2O_3/TREO	0.001
Er_2O_3/TREO	0.01
Tm_2O_3/TREO	001
Lu_2O_3/TREO	0.001
Y_2O_3/TREO	0.001
非稀土杂质	％最大值
Fe_2O_3	0.001
SiO_2	0.01
CaO	0.01
Cl^-	0.03
NiO	0.001
ZnO	0.001
PbO	0.001

[0078] 将2g氧化镱粉末与3μg铬氧化物、0.1g二硬脂酸铝共混。光学分析显示，氧化镱粉末具有约10μm的平均粒度。

[0079] 将粉末共混物充分混合，使用30kN的压力在压片机中预固结，形成预固结的块状物或丸粒。将块状物研磨过筛，形成最大粒径为425μm的颗粒。将该颗粒与0.13g二硬脂酸铝(作为润滑剂或粘合剂)共混，使用1kN的压力压制模塑形成球形生坯。

[0080] 将球形生坯放置于由镁氧化物制成的支架上，通过将生坯保持在500℃、0.5h来实施脱脂步骤，去除有机粘合剂组分。随后，以5K/min的加热速度将生坯加热至1760℃的烧结

温度，并使用由氩气和氢气组成的烧结气氛，在大气压下、在烧结温度保持6小时。

[0081] 经烧结的氧化镱靶的分析

[0082] 由上述工艺获得的氧化镱靶具有球形的形状，如使用螺旋测微器所测量的，具有约1.7mm的平均直径。

[0083] 如使用流体静力称衡法所测量的，氧化镱靶的密度为8.594g/cm^3。因此，氧化镱靶具有理论密度93.72％的烧结密度。

[0084] 进而，将一个经烧结的球形氧化镱靶磨碎至靶的中心，并在50倍和100倍放大的光学显微镜下分析。显微照片的软件辅助评估显示，最大孔径为67μm，总孔隙度为4.4％。经烧结的氧化镱的平均粒度为约40μm。

[0085] 使用电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)测量经烧结的氧化镱的金属含量。氧化镱靶具有1040μg/g(ppm)的铬含量，5730μg/g的铝含量，以及4380μg/g的镁含量，均为金属原子含量。

[0086] 稳定性测试

[0087] 商业核反应堆的反应堆芯条件包括高压和超过300℃的高温。此外，经烧结的氧化镱靶必须能够承受核反应堆仪表管内的输送条件。保守计算表明，将经烧结的靶插入到仪表管中，将靶输送到核反应堆芯并从仪表管收集经辐照的靶涉及在10bar的输送压强和/或10m/s的冲击速度下的至少4次冲击。

[0088] 将25个经烧结的氧化镱靶插入到实验室规模的核反应堆球体测量系统中，使用10bar压强的加压空气喷射穿过系统5次，以制造总共10次冲击。随后对靶进行目视检查来确定任何损伤。随后将经烧结的靶在350℃下储存两周，并再次将其输送穿过球体测量系统，再制造两次冲击。

[0089] 全部经烧结的氧化镱靶通过烧结测试而无任何损伤。

[0090] 认为氧化镱-176对于产生放射性同位素Lu-177是有用的；Lu-177具有医学成像和癌症治疗方面的应用，但由于其半衰期短(约为6.7天)，不能长时间储存。Yb-176根据以下反应转化成Lu-177：

[0091] $^{176}Yb(n,Y)^{177}Yb(-,\beta)^{177}Lu$.

[0092] 测试结果表明，由本发明的方法获得的经烧结的氧化镱靶是在产能运行时在核反应堆的仪表管中产生Lu-177的有用前体。

[0093] 从多种稀土氧化物前体产生其它放射性同位素的类似反应为本领域技术人员所知晓。