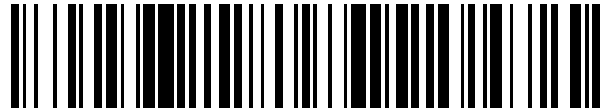


19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 738 390**

51 Int. Cl.:

G21G 1/02 (2006.01)

H05H 6/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **19.01.2016 PCT/EP2016/050970**

87 Fecha y número de publicación internacional: **04.08.2016 WO16120120**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **19.01.2016 E 16700992 (7)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **15.05.2019 EP 3251126**

54 Título: **Objetivo de irradiación para la producción de radioisótopos, método de preparación y uso del objetivo de irradiación**

30 Prioridad:

29.01.2015 WO PCT/EP2015/051844
29.01.2015 WO PCT/EP2015/051842

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
22.01.2020

73 Titular/es:

FRAMATOME GMBH (100.0%)
Paul-Gossen-Strasse 100
91052 Erlangen, DE

72 Inventor/es:

SCHUSTER, BEATRICE

74 Agente/Representante:

PONS ARIÑO, Ángel

ES 2 738 390 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Objetivo de irradiación para la producción de radioisótopos, método de preparación y uso del objetivo de irradiación

5 Campo técnico de la invención

La presente invención se dirige a un objetivo de irradiación usado para producir radioisótopos en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear comercial, y a un método de preparación del objetivo de irradiación.

10 Antecedentes de la invención

Los radioisótopos encuentran aplicaciones en diversos campos, tales como la industria, la investigación, la agricultura y la medicina. Los radioisótopos artificiales se producen típicamente al exponer un material objetivo adecuado a un flujo de neutrones en un ciclotrón o en un reactor de investigación nuclear durante un tiempo apropiado. Los sitios de irradiación en los reactores de investigación nuclear son caros y se volverán aún más escasos en el futuro debido al cierre relacionado con la edad de los reactores de investigación.

El documento EP 2 093 773 A2 se dirige a un método y un sistema de producción de radioisótopos mediante el uso de los tubos de instrumentación de un reactor de energía nuclear comercial, el método que comprende: elegir al menos un objetivo de irradiación con una sección transversal de neutrones conocida; insertar el objetivo de irradiación en un tubo de instrumentación de un reactor nuclear, el tubo de instrumentación que se extiende hacia el reactor para exponer el objetivo de irradiación al flujo de neutrones que se encuentra en el reactor nuclear durante el funcionamiento, el objetivo de irradiación que se convierte sustancialmente en un radioisótopo cuando se expone a un flujo de neutrones que se encuentra en el reactor nuclear.

El sistema de generación de radioisótopos descrito en el documento EP 2 093 773 A2 incluye subsistemas adicionales, tales como un subsistema para conducir el objetivo de irradiación, un almacenamiento del objetivo de irradiación y un subsistema de inserción/extracción que deben acomodarse en el espacio disponible restante de un reactor de energía nuclear comercial ya construido. El subsistema para conducir el objetivo de irradiación es mecánico y comprende engranajes de conducción para colocar el objetivo de irradiación en una posición axial en el tubo de instrumentación durante un período de tiempo correspondiente a un período de tiempo requerido para convertir sustancialmente todo el objetivo de irradiación en un radioisótopo a un nivel de flujo correspondiente a la posición axial basado en un perfil de flujo de neutrones axiales del reactor nuclear en funcionamiento; y retirar el objetivo de irradiación y el radioisótopo producido del tubo de instrumentación. Los objetivos de irradiación aproximadamente esféricos pueden ser generalmente huecos e incluyen un material líquido, gaseoso y/o sólido que se convierte en un radioisótopo gaseoso, líquido y/o sólido útil. La envoltura que rodea el material objetivo puede tener cambios físicos despreciables cuando se expone a un flujo de neutrones. Alternativamente, los objetivos de irradiación pueden ser generalmente sólidos y fabricarse a partir de un material que se convierte en un radioisótopo útil cuando se expone a un flujo de neutrones presente en un reactor nuclear comercial en funcionamiento.

El método y sistema de generación de radioisótopos descritos en el documento EP 2 093 773 A2 puede proporcionar una fuente complementaria de radioisótopos al activar los objetivos de irradiación mediante el uso de los tubos de instrumentación de un reactor de energía nuclear comercial. Sin embargo, el método y sistema aún no son óptimos económicamente y son difíciles de implementar técnicamente porque requieren subsistemas mecánicos principales adicionales que deben instalarse en un reactor de energía nuclear comercial ya existente, y los costos de producción de los objetivos de irradiación esféricos no son económicamente sostenibles.

El documento EP1 336 596 B1 describe un cuerpo transparente de óxido de metal de tierras raras sinterizado representado por la fórmula general R_2O_3 en donde R es al menos un elemento de un grupo que comprende Y, Dy, Ho, Er, Tm, Yb y Lu. El cuerpo sinterizado se prepara al proporcionar una mezcla de un aglutinante y un polvo de material de óxido de metal de tierras raras de alta pureza que tiene una pureza del 99,9% o más, y que tiene un contenido de Al de 5 - 100 wt-ppm en peso metálico y un contenido de Si de 10 wt-ppm o menos en peso metálico, para preparar un cuerpo de moldeado que tenga una densidad verde del 58% o más de la densidad teórica. El aglutinante se elimina por tratamiento térmico, y el cuerpo de moldeado se sinteriza en una atmósfera de hidrógeno o gas inerte o en un vacío a una temperatura de entre 1450 °C y 1700 °C durante 0,5 horas o más. La adición de Al sirve como un auxiliar de sinterización y se controla cuidadosamente de manera que el cuerpo sinterizado tenga un tamaño del grano medio de entre 2 y 20 μm .

El documento US 8 679 998 B2 describe un miembro resistente a la corrosión para su uso en un aparato de fabricación de semiconductores. Una materia prima de Yb_2O_3 que tiene una pureza de al menos el 99,9 % se somete a una presión uniaxial que se forma a una presión de 200 kgf/cm^2 (19,6 MPa), para obtener un compacto en forma de disco que tenga un diámetro de aproximadamente 35 mm y un grosor de aproximadamente 10 mm. El compacto se coloca en un molde de grafito para la cocción. La cocción se realiza mediante el uso de un método de prensado en caliente a una temperatura de 1800°C bajo una atmósfera de argón durante al menos 4 horas para obtener un miembro resistente a la corrosión para el aparato de fabricación de semiconductores. La presión durante la cocción es de 200 kgf/cm^2 (19,6 MPa). El cuerpo sinterizado de Yb_2O_3 tiene una porosidad abierta del 0,2 %.

El documento US 2004/254418 A1 describe una fuente radiactiva Yb-169 encerrada en una cápsula biocompatible para tratar un tumor o área cancerosa. La fuente se produce a partir del iterbio que está sustancialmente enriquecido en Yb-168 y que se activa mediante la exposición al flujo de neutrones para contener una fracción significativa de Yb-169. La fuente radiactiva de Yb comprende iterbio en polvo u óxido de iterbio comprimido en una forma sólida para formar un gránulo que tiene un volumen menor que 2 mm³. El óxido de iterbio en polvo puede formarse en un gránulo mediante la sinterización o el prensado isostático en caliente. El gránulo puede incluir además uno o más materiales seleccionados de aluminio, cobre, vanadio, níquel, hierro, titanio, silicio, carbono, oxígeno, y aleaciones y compuestos de los anteriores combinados con el iterbio mediante la mezcla, la combinación o la aleación.

Los métodos anteriores generalmente proporcionan cuerpos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados adaptados a aplicaciones específicas tales como la resistencia a la corrosión, la transparencia óptica o las fuentes de braquiterapia radiactivas encapsuladas. Sin embargo, ninguno de los cuerpos sinterizados producidos mediante estos métodos tiene las propiedades requeridas para los objetivos de irradiación que van a usarse para la producción de radioisótopos en un sistema de tubos de instrumentación de un reactor de energía nuclear comercial.

Resumen de la invención

Sería conveniente tener una solución que supere los problemas anteriores al proporcionar un sistema de generación de radioisótopos basado en una solución de conducción más segura para el objetivo irradiado que, además, pueda implementarse a partir de pequeñas modificaciones en los sistemas de medición existentes de seguridad comprobada ya incorporados en algunos reactores de energía nuclear comerciales.

Es un objeto de la presente invención proporcionar objetivos apropiados que puedan usarse como precursores para la producción de radioisótopos predeterminados mediante la exposición al flujo de neutrones en un reactor de energía nuclear comercial, y que al mismo tiempo tengan características mecánicas capaces de soportar las condiciones específicas en un sistema de generación de radioisótopos operado neumáticamente.

Es un objeto adicional de la invención proporcionar un método para la producción de estos objetivos de irradiación que sea rentable y adecuado para la producción en serie.

De acuerdo con la invención, este objeto se resuelve mediante un objetivo de irradiación de la reivindicación 1, y un método para la producción de objetivos de irradiación de acuerdo con la reivindicación 15.

Las realizaciones preferidas de la invención se proporcionan en las reivindicaciones secundarias, que pueden combinarse libremente entre sí.

Los objetivos de irradiación de la presente invención tienen pequeñas dimensiones adaptadas para su uso en sistemas de medición de bolas comercialmente existentes, y también cumplen con los requisitos con respecto a la resistencia a la presión, la resistencia a la temperatura y la resistencia al cizallamiento de manera que sean lo suficientemente estables cuando se insertan en un sistema de medición de bolas y se transportan a través del núcleo del reactor por medio de aire presurizado. Además, los objetivos pueden proporcionarse con una superficie lisa para evitar la abrasión de los tubos de instrumentación. Además, los objetivos de irradiación tienen una pureza química que los hace útiles para la producción de radioisótopos.

El objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado se desea para su uso en un sistema de generación de radioisótopos accionado neumáticamente en donde el objetivo se irradia en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear en funcionamiento. El objetivo sinterizado tiene características mecánicas y características químicas para la resistencia de integridad mecánica a las restricciones mecánicas y los impactos resultantes del accionamiento neumático durante la inserción en el tubo de instrumentación, la irradiación y la recuperación desde el tubo de instrumentación después de la irradiación.

En consecuencia, el objetivo de la invención se desea para su uso en un sistema para generar radioisótopos en un recipiente de reactor nuclear en funcionamiento que comprende un subsistema de conducción del objetivo de irradiación que tiene medios para producir un fluido gaseoso presurizado que interactúa con los objetivos de irradiación para conducirlos desde un subsistema de almacenamiento del objetivo hacia el tubo de instrumentación, y desde el tubo de instrumentación hacia un subsistema de extracción después de la irradiación.

De acuerdo con la invención, el objetivo de metal de tierras raras sinterizado contiene cromo en una cantidad de 500 a 2000 µg/g, y Mg y/o Ca en una cantidad de 1000 a 6000 µg/g.

Aún preferentemente, el objetivo de metal de tierras raras sinterizado contiene aluminio en una cantidad de entre 500 y 8000 µg/g, preferentemente 500 a 6000 µg/g.

En una realización preferida, el objetivo de metal de tierras raras sinterizado consiste en un óxido de metal de tierras raras representado por la fórmula general R₂O₃ en donde R es un metal de tierras raras seleccionado del grupo que

consiste en Nd, Sm, Y, Dy, Ho, Er, Tm, Yb y Lu, preferentemente Sm, Y, Ho o Yb, en donde el óxido de metal de tierras raras se dopa con cromo en una cantidad de 500 a 2000 $\mu\text{g/g}$, Mg y/o Ca en una cantidad de 1000 a 6000 $\mu\text{g/g}$, y contiene aluminio en una cantidad de entre 500 y 8000 $\mu\text{g/g}$, e impurezas inevitables.

5 En un aspecto adicional, la invención se dirige a un objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado para producir un radioisótopo en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear, en donde el objetivo sinterizado tiene una densidad de al menos el 90 por ciento de la densidad teórica, y en donde el objetivo sinterizado contiene cromo en una cantidad de 500 a 2000 $\mu\text{g/g}$, y Mg y/o Ca en una cantidad de 1000 a 6000 $\mu\text{g/g}$.

10 Los inventores sorprendentemente encontraron que el uso de cromo como auxiliar de sinterización en cantidades controladas proporciona suficiente estabilidad mecánica a los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados de manera que los objetivos pueden soportar las condiciones severas en el núcleo de un reactor nuclear comercial y durante el transporte a través de los tubos de instrumentación de un sistema de medición de bolas o un sistema de medición de sonda en el núcleo. Aunque no deseen estar sujetos a ninguna teoría, los inventores
15 contemplan que una adición de cromo al óxido de metal de tierras raras, junto con pequeñas cantidades de magnesio y/o calcio, puede aumentar el tamaño del grano del óxido de metal de tierras raras durante la sinterización y reduce la porosidad abierta. Otros auxiliares de sinterización, tal como la alúmina, también pueden resultar en una alta densidad de sinterización, pero se ha demostrado que son insuficientes en términos de la estabilidad mecánica de los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados. Por lo tanto, aunque también pueden estar presentes pequeñas
20 cantidades de estos otros auxiliares de sinterización, la adición de una cantidad controlada de cromo se requiere para impartir la estabilidad mecánica a los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados.

De acuerdo con una realización preferida del objetivo sinterizado, el óxido de metal de tierras raras se representa por la fórmula general R_2O_3 en donde R es un metal de tierras raras seleccionado del grupo que consiste en Nd, Sm, Y, Dy, Ho, Er, Tm, Yb y Lu.
25

Con mayor preferencia, el metal de tierras raras R en el óxido de metal de tierras raras R_2O_3 es Sm, Y, Ho o Yb, preferentemente Yb-176 que es útil para producir Lu-177, o Yb-168 que puede usarse para producir Yb-169.

30 Con la máxima preferencia, el metal de tierras raras en el óxido de metal de tierras raras es monoisotópico. Esto garantiza un alto rendimiento del radioisótopo deseado y reduce los esfuerzos y costos de purificación.

En una realización preferida, el objetivo sinterizado contiene Mg en una cantidad de entre 1000 y 6000 $\mu\text{g/g}$. El calcio puede usarse para reemplazar el magnesio en parte o en su totalidad. Se ha encontrado que el calcio y el magnesio
35 son efectivos para aumentar el tamaño del grano de los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados. Sin embargo, si la cantidad de Ca y/o Mg excede 6000 $\mu\text{g/g}$, pueden disminuir las resistencias mecánicas de los objetivos sinterizados. Además, se encontró que el uso de Ca y/o Mg solos no da como resultado objetivos sinterizados que tengan suficiente estabilidad mecánica para su uso en un sistema de tubos de instrumentación de un reactor comercial.

40 Los compuestos de aluminio también pueden servir como un auxiliar de sinterización en la sinterización de óxidos de metales de tierras raras, y pueden formar fases de óxidos mixtos que se depositan en los límites de grano del óxido de metal de tierras raras sinterizado. La presencia de pequeñas cantidades de estas fases de óxidos mixtos también puede aumentar la resistencia mecánica de los objetivos sinterizados.

45 Preferentemente, el objetivo sinterizado contiene aluminio en una cantidad de entre 500 y 8000 $\mu\text{g/g}$, basado en el peso del objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado, preferentemente 6000 $\mu\text{g/g}$ o menos. Un contenido de metal de aluminio de más de 8000 $\mu\text{g/g}$ puede interferir con la estabilidad mecánica de los objetivos sinterizados y/o su uso adicional para la producción de radioisótopos.

50 Con la máxima preferencia, el objetivo sinterizado consiste en óxido de metal de tierras raras, cromo en una cantidad de 500 a 2000 $\mu\text{g/g}$, Mg y/o Ca en una cantidad de 1000 a 6000 $\mu\text{g/g}$, y opcionalmente aluminio en una cantidad de 500 a 8000 $\mu\text{g/g}$, aparte de impurezas inevitables.

55 Preferentemente, el objetivo sinterizado tiene una densidad de al menos el 92 por ciento de la densidad teórica. Aún preferentemente, la densidad de sinterización puede variar del 92 % al 98 % de la densidad teórica, con mayor preferencia del 92 % al 95 %. Las densidades de sinterización más altas requerirían condiciones de sinterización más severas y, por lo tanto, son menos preferidas. La densidad de sinterización puede determinarse mediante la medición hidrostática.

60 En una realización adicional, el objetivo sinterizado tiene una porosidad de menos del 10 %, preferentemente menos del 5 %. Controlar la porosidad en un intervalo de hasta el 10 %, preferentemente hasta el 5 %, aumenta la resistencia mecánica al impacto de los objetivos sinterizados.

65 Preferentemente, el tamaño máximo de los poros es menor que 100 μm , con mayor preferencia menor que 80 μm , y con la máxima preferencia menor que 70 μm .

5 El tamaño promedio del grano del objetivo sinterizado es preferentemente de 35 μm o más, con la máxima preferencia de 40 μm o más. Aún preferentemente, el tamaño promedio del grano puede variar de 35 μm a aproximadamente 80 μm . Los granos individuales del óxido de metal de tierras raras sinterizado pueden tener un tamaño del grano de hasta 250 μm , preferentemente hasta 300 μm . Los inventores descubrieron que es preferible un tamaño del grano en el intervalo dado para proporcionar al objetivo sinterizado la dureza y la resistencia mecánica suficientes para soportar las condiciones de impacto en los sistemas de medición de bolas operados neumáticamente.

10 El objetivo sinterizado puede tener cualquier forma que lo haga útil para insertarse y transportarse a través de un tubo de instrumentación usado en un reactor nuclear comercial. Preferentemente, el objetivo sinterizado tiene una forma redonda o esférica, con mayor preferencia una forma esférica.

15 Preferentemente, el objetivo sinterizado tiene un diámetro en un intervalo de 1 a 5 mm, preferentemente de 1 a 3 mm. Se entiende que la sinterización implica un encogimiento en el orden de hasta el 30 %. Por lo tanto, las dimensiones del cuerpo verde se eligen de manera que el encogimiento durante la sinterización resulta en objetivos sinterizados que tienen un diámetro predeterminado para la inserción en los sistemas de medición de bolas comerciales.

20 Preferentemente, los objetivos de acuerdo con la presente invención son resistentes a una presión de entrada neumática de 10 bar usada en los sistemas de medición de bolas comerciales y/o una velocidad de impacto de 10 m/s. Además, como los objetivos se han sometido a altas temperaturas de sinterización, se entiende que los objetivos sinterizados son capaces de soportar temperaturas de procesamiento del orden de aproximadamente 400 °C presentes en el núcleo de un reactor nuclear comercial en funcionamiento.

25 En un aspecto adicional de la invención, un método para preparar un objetivo de irradiación para la producción de radioisótopos en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear, comprende las etapas de:

- Proporcionar una mezcla en polvo que comprende un óxido de metal de tierras raras, óxido de cromo y un aglutinante en donde el óxido de cromo está presente en la mezcla en polvo en una cantidad de 1000 a 3000 $\mu\text{g/g}$;
- Preconsolidar la mezcla en polvo para formar gránulos que tengan un tamaño del grano menor que 500 μm , y consolidar la mezcla en polvo granulada para formar un cuerpo verde; o
- 30 – Granular la mezcla en polvo mediante la aglomeración en un tambor giratorio o en un disco giratorio para formar un cuerpo verde; y
- Colocar el cuerpo verde en un soporte que comprende Mg y/o Ca y sinterizar a una temperatura de al menos 1700 °C para formar un objetivo de óxido de tierras raras sinterizado que tenga una densidad sinterizada de al menos el 90 % de la densidad teórica.

35 La invención recurre a procesos conocidos de la fabricación de cerámica sinterizada y granulación en seco o técnicas de aglomeración en polvo, y por lo tanto puede llevarse a cabo en equipos comercialmente disponibles, que incluyen los moldes, prensas e instalaciones de sinterización apropiados. La granulación en seco y el moldeado a presión también permiten proporcionar a los objetivos varias formas, que incluyen formas y dimensiones redondas o esféricas, que facilitan el uso en los tubos de instrumentación existentes para los sistemas de medición de bolas. Por lo tanto, los costos para preparar los objetivos de irradiación pueden mantenerse bajos ya que será posible la producción en serie de objetivos de precursores de radioisótopos adecuados. El método también es variable y útil para producir muchos objetivos diferentes que tengan la pureza química requerida. Además, se encuentra que los objetivos sinterizados son mecánicamente estables y, en particular, resistentes a la transportación dentro de tubos de instrumentación que usan aire presurizado incluso a temperaturas de hasta 400 °C presentes en el núcleo del reactor nuclear.

40 De acuerdo con una realización preferida, el óxido de metal de tierras raras en la mezcla en polvo se representa por la fórmula general R_2O_3 en donde R es un metal de tierras raras seleccionado del grupo que consiste en Nd, Sm, Y, Dy, Ho, Er, Tm, Yb y Lu.

45 Preferentemente, el polvo del óxido de metal de tierras raras tiene una pureza mayor que el 99 %, con mayor preferencia mayor que el 99,9 %/TREO (TREO = Óxido total de tierras raras), o incluso mayor que el 99,99 %. Los inventores contemplan que una ausencia de impurezas de captura de neutrones, tales como B, Cd, Gd, es beneficiosa para el uso adicional del objetivo sinterizado como un precursor de radioisótopo.

50 Con la máxima preferencia, el polvo del óxido de metal de tierras raras es óxido de iterbio enriquecido de Yb-176 con un grado de enriquecimiento de > 99 %.

60 El óxido de metal de tierras raras en la mezcla en polvo puede tener un tamaño promedio del grano en el intervalo de entre 5 y 50 μm . La distribución del tamaño del grano es preferentemente de $d_{50} = 10 \mu\text{m}$ y $d_{100} = 30 \mu\text{m}$ a $d_{50} = 25 \mu\text{m}$ y $d_{100} = 50 \mu\text{m}$. Los polvos compactos de óxido de metal de tierras raras se comercializan por ITM Isotopen Technologie Munchen AG.

- 5 La cantidad de óxido de cromo en la mezcla en polvo se controla cuidadosamente para que esté en un intervalo de 1000 a 3000 µg/g, basado en el peso del óxido de metal de tierras raras. Una cantidad de menos de 1000 µg/g de óxido de cromo no aumenta sustancialmente la estabilidad mecánica de los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados. El uso de óxido de cromo en una cantidad de más de 3000 µg/g no muestra ningún otro efecto beneficioso.
- 10 El aglutinante en la mezcla en polvo puede ser cualquier compuesto conocido como un lubricante en el procesamiento de polvos de cerámica para la sinterización. Preferentemente, el aglutinante es una sal metálica de un ácido graso, con mayor preferencia una sal de aluminio o calcio de un ácido graso, aún con mayor preferencia un estearato de aluminio, y con la máxima preferencia un diestearato de aluminio.
- 15 Con mayor preferencia, el aglutinante se añade al polvo en una cantidad de entre el 0,01 al 0,1 por ciento en peso, preferentemente del 0,02 al 0,07 por ciento en peso.
- 20 Con la máxima preferencia, la mezcla en polvo consiste en el óxido de metal de tierras raras, el óxido de cromo y el aglutinante, aparte de las impurezas inevitables.
- 25 Para preparar los cuerpos verdes de los objetivos sinterizados, la mezcla en polvo se somete preferentemente a una prensa de granulación en seco. Las partículas de polvo primario pueden agregarse bajo alta presión mediante el uso de mezcladores-granuladores oscilantes o de alto cizallamiento. Preferentemente, la preconsolidación de la mezcla en polvo se lleva a cabo mediante el uso de una prensa de tabletas de alta resistencia con una fuerza de prensado en un intervalo entre 10 y 50 kN, preferentemente de 25 a 35 kN para formar una tableta o barra grande, o mediante el uso de un compactador de rodillos para apretar la mezcla en polvo entre dos rodillos para producir una cinta o gránulos.
- 30 Las barras o gránulos preconsolidados se muelen luego a través de un molino de bajo cizallamiento y se pasan a través de un tamiz para formar gránulos que tengan un tamaño del grano de menos de 500 µm, preferentemente menos de 450 µm. Si el tamaño del grano de los gránulos supera los 500 µm, puede ser difícil lograr una consolidación adicional de los gránulos.
- 35 Preferentemente, se añade más aglutinante a los gránulos preconsolidados en una cantidad de entre 5 y 10 por ciento en peso, preferentemente de 5 a 7 por ciento en peso.
- 40 Si el aglutinante contiene calcio, magnesio o aluminio, la cantidad total de aglutinante usado en el proceso de granulación se controla para que no exceda una cantidad de 6000 µg/g de Ca y/o Mg, y/o una cantidad de 8000 µg/g de Al, basado en el peso total del objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado.
- 45 Los gránulos preconsolidados se consolidan luego mediante el moldeado a presión para formar cuerpos verdes de los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados. Preferentemente, los cuerpos verdes tienen una forma redonda o esferoidal, con mayor preferencia una forma esférica. El término "esferoidal" significa que el cuerpo es capaz de rodar, pero no necesariamente tiene la forma de una esfera perfecta.
- 50 El moldeado a presión de los gránulos preconsolidados puede llevarse a cabo preferentemente mediante el prensado hidráulico con una fuerza de prensado en un intervalo de 0,1 a 10 kN, preferentemente de 0,5 a 2 kN, mediante el uso de un equipo comercialmente disponible que se conoce por un experto en la técnica.
- 55 El molde puede hacerse de acero endurecido para evitar una absorción de impurezas del material del molde durante la consolidación del cuerpo verde.
- 60 Preferentemente, la densidad verde del cuerpo verde después del moldeado es de hasta el 65 por ciento de la densidad teórica, y con mayor preferencia en un intervalo del 55 al 65 por ciento de la densidad teórica. La alta densidad verde facilita el procesamiento automatizado del cuerpo verde consolidado.
- Opcionalmente, el cuerpo verde redondo o esferoidal puede pulirse para mejorar su esfericidad o redondez.
- 65 En un método alternativo, los cuerpos verdes redondos o esferoidales pueden formarse mediante la aglomeración de polvos. Las técnicas de aglomeración de polvos se conocen por los expertos en la técnica para producir cuerpos esféricos compactados. El artículo de revisión de N. Clausen, G. Petzow, "Kugelherstellung durch Pulveragglomeration", Z. f. Werkstofftechnik 3 (1973), pp. 148-156, describe métodos de aglomeración estándar y los parámetros físicos relevantes. Un tambor giratorio para la aglomeración de polvos se describe, por ejemplo, en el documento EP 0 887 102 A2.
- Preferentemente, la mezcla en polvo que comprende o consiste en el óxido de metal de tierras raras, el óxido de cromo y el aglutinante se granula mediante la aglomeración en un tambor giratorio o en un disco de granulación.
- 65 Con mayor preferencia, el aglutinante se añade a la mezcla en polvo de óxido durante la etapa de granulación, preferentemente al rociar una solución o suspensión acuosa del aglutinante sobre el polvo. Además, es posible

proporcionar la mezcla en polvo que incluye el aglutinante, y someter la mezcla en polvo a la granulación mediante la aglomeración en un tambor giratorio o en un disco de granulación.

5 Los cuerpos verdes granulados tienen preferentemente una densidad verde de al menos el 30 por ciento de la densidad teórica, con mayor preferencia al menos el 40 por ciento y aún con mayor preferencia en un intervalo del 30 al 50 por ciento de la densidad teórica. La densidad verde es suficiente para facilitar el procesamiento automatizado del cuerpo verde granulado.

10 En la etapa de sinterización, el cuerpo verde se mantiene preferentemente a una temperatura de sinterización de entre el 70 y el 80 por ciento de la temperatura de solidificación del óxido de metal de tierras raras. Con mayor preferencia, la temperatura de sinterización está en un intervalo de entre 1700 y 1850 °C, aún con mayor preferencia entre 1750 y 1850 °C. Los inventores encontraron que una temperatura de sinterización en este intervalo es adecuada para sinterizar la mayoría de los óxidos de metales de tierras raras a una alta densidad de sinterización de al menos el 90 por ciento de la densidad teórica.

15 Preferentemente, el cuerpo verde se mantiene a la temperatura de sinterización y se sinteriza durante un tiempo de 4 a 24 horas, preferentemente a presión atmosférica.

20 De acuerdo con una realización preferida, el cuerpo verde se sinteriza en una atmósfera reductora que comprende una mezcla de hidrógeno y un gas inerte tal como nitrógeno y/o argón.

Aunque es menos preferido, el cuerpo verde también puede sinterizarse en una atmósfera oxidante que comprende una mezcla de oxígeno y un gas inerte tal como nitrógeno y/o argón.

25 Antes de la sinterización, el cuerpo verde puede someterse al desengrasado al calentar el cuerpo verde a una temperatura en un intervalo de 400 a 700 °C, durante 0,5 a 1 hora.

30 Preferentemente, el cuerpo verde se coloca sobre un soporte que comprende o consiste en MgO y/o CaO, preferentemente MgO, durante la sinterización y, opcionalmente, el desengrasado del cuerpo verde. Pequeñas cantidades de MgO y CaO se absorben entonces mientras el cuerpo verde se sinteriza para formar las fases de óxidos mixtos depositadas en los límites de grano del óxido de metal de tierras raras. Las fases de óxidos mixtos pueden ayudar al crecimiento del grano y aumentar la resistencia mecánica de los objetivos sinterizados.

35 Opcionalmente, el objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado puede pulirse o molerse para eliminar los residuos superficiales y mejorar su rugosidad superficial. Este tratamiento posterior a la sinterización puede reducir la abrasión de los tubos de instrumentación por los objetivos sinterizados cuando se insertan a alta presión.

40 De acuerdo con un aspecto adicional de la invención, los objetivos de óxidos de metales de tierras raras sinterizados se usan para producir uno o más radioisótopos en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear durante el funcionamiento para producir energía. En un método para producir los radioisótopos, los objetivos sinterizados se insertan en un tubo de instrumentación que se extiende en el núcleo del reactor por medio de aire presurizado, preferentemente a una presión de aproximadamente 7 a 30 bar, y se exponen al flujo de neutrones que se encuentra en el reactor nuclear durante el funcionamiento, por un período de tiempo predeterminado, de manera que el objetivo sinterizado se convierte sustancialmente en un radioisótopo, y se retira el objetivo sinterizado y el radioisótopo producido del tubo de instrumentación.

45 Un sistema para generar radioisótopos en un recipiente de reactor nuclear en funcionamiento que comprende un subsistema de conducción del objetivo de irradiación que tiene medios para producir un fluido gaseoso presurizado que interactúa con los objetivos de irradiación sinterizados para conducirlos desde un subsistema de almacenamiento del objetivo hacia el tubo de instrumentación, y desde el tubo de instrumentación hacia un subsistema de extracción después de la irradiación. Preferentemente, el óxido de metal de tierras raras es iterbio-176 y el radioisótopo deseado es Lu-177. Después de la exposición al flujo de neutrones, los objetivos sinterizados se disuelven en ácido y se extrae el Lu-177, por ejemplo, como se describe en la patente Europea EP 2 546 839 A1 que se incorpora en la presente descripción como referencia. El Lu-177 es un radioisótopo que tiene aplicaciones específicas en la terapia del cáncer y las imágenes médicas.

50 La construcción y el método de operación de la invención, junto con los objetos adicionales y sus ventajas, se entenderán mejor a partir de la siguiente descripción de realizaciones específicas.

60 Descripción detallada de las realizaciones preferidas

Preparación de objetivos de iterbio sinterizados

65 Se produjo un objetivo de iterbio sinterizado al proporcionar un polvo de iterbio, mezclar el polvo de iterbio con óxido de cromo, granular en seco y consolidar el polvo en un molde para formar un cuerpo verde esférico, y sinterizar el cuerpo verde en fase sólida para formar un objetivo de iterbio esférico.

El polvo de iterbio inicial era óxido de Yb-176 monoisotópico y tenía una pureza mayor del 99 %/TREO, y se usó la siguiente descripción:

5	Yb ₂ O ₃ /TREO (% mín.)	99,9
	TREO (% mín.)	99
	Pérdida en la ignición (% máx.)	1
10		
	Impurezas de tierras raras	% máx.
	Tb ₄ O ₇ /TREO	0,001
15	Dy ₂ O ₃ /TREO	0,001
	Ho ₂ Q ₃ /TREO	0,001
	Er ₂ O ₃ /TREO	0,01
20	Tm ₂ O ₃ /TREO	0,01
	LU ₂ O ₃ /TREO	0,001
	Y ₂ O ₃ /TREO	0,001
25		
	Impurezas de tierras no raras	% máx.
	Fe ₂ O ₃	0,001
	SiO ₂	0,01
30	CaO	0,01
	Cl	0,03
	NiO	0,001
35	ZnO	0,001
	PbO	0,001

2 g del polvo de iterbio se mezclaron con 3 µg de óxido de cromo y 0,1 g de diestearato de aluminio. El análisis óptico mostró que el polvo de iterbio tenía un tamaño promedio del grano de aproximadamente 10 µm.

La mezcla en polvo se mezcló completamente y se preconsolidó en una prensa de tabletas mediante el uso de una fuerza de prensado de 30 kN para formar las barras o gránulos preconsolidados. Las barras se molieron y se tamizaron para formar gránulos que tienen un tamaño de partícula máximo de 425 µm. Los gránulos se mezclaron con 0,13 g de diestearato de aluminio como un lubricante o aglutinante, y se moldearon por compresión para formar cuerpos verdes esféricos mediante el uso de una fuerza de prensado de 1 kN.

Los cuerpos verdes esféricos se colocaron en un soporte hecho de óxido de magnesio y se sometieron a una etapa de desengrasado para eliminar los componentes de aglutinante orgánico al mantener los cuerpos verdes a 500 °C durante 0,5 horas. Posteriormente, los cuerpos verdes se calentaron a una temperatura de sinterización de 1760 °C a una velocidad de calentamiento de 5 K/min, y se mantuvieron a la temperatura de sinterización durante 6 horas a presión atmosférica mediante el uso de una atmósfera de sinterización que consiste en argón e hidrógeno.

Análisis de los objetivos de iterbio sinterizados

Los objetivos de iterbio obtenidos mediante el proceso anterior tenían una forma esférica y un diámetro promedio de aproximadamente 1,7 mm, según lo medido mediante el uso de un calibrador de tornillo micrométrico.

La densidad de los objetivos de iterbio fue de 8,594 g/cm³ según lo medido por pesaje hidrostático. Por lo tanto, los objetivos de iterbio tenían una densidad de sinterización del 93,72 % de la densidad teórica.

Además, uno de los objetivos de iterbio esféricos sinterizados se trituró hasta el centro del objetivo y se analizó mediante microscopía óptica a un aumento de 50 y 100 veces. La evaluación asistida por programa informático de las micrografías mostró que el tamaño máximo de los poros fue de 67 µm, y que la porosidad total fue del 4,4 %. El tamaño promedio del grano del iterbio sinterizado fue de aproximadamente 40 µm.

El contenido de metal del iterbio sinterizado se midió mediante espectrometría de masa de plasma acoplado inductivamente (*ICP-MS*). Los objetivos de iterbio tenían un contenido de cromo de 1040 µg/g (ppm), un contenido de aluminio de 5730 µg/g, y un contenido de magnesio de 4380 µg/g, cada uno referido al contenido de átomos metálicos.

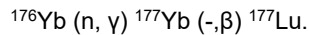
5 Pruebas de estabilidad

10 Las condiciones en el núcleo del reactor de un reactor nuclear comercial incluyen alta presión y temperaturas superiores a 300 °C. Además, los objetivos de iterbio sinterizados deben poder soportar las condiciones de transporte en los tubos de instrumentación del reactor nuclear. Los cálculos conservadores muestran que insertar los objetivos sinterizados en el tubo de instrumentación, transportar los objetivos al núcleo del reactor nuclear y recolectar los objetivos irradiados desde los tubos de instrumentación implicará al menos cuatro impactos a una presión de transportación de 10 bar y/o una velocidad de impacto de 10 m/s.

15 Se insertaron 25 objetivos de iterbio sinterizados en un sistema de medición de bolas a escala de laboratorio de un reactor nuclear, y se dispararon cinco veces a través del sistema mediante el uso de aire presurizado a una presión de 10 bar, lo que creó de esta manera un total de diez impactos. Los objetivos se inspeccionaron entonces visualmente para determinar los daños. Después, los objetivos sinterizados se almacenaron a 350 °C durante dos semanas, y nuevamente se sometieron a una transportación a través del sistema de medición de bolas, que creó de esta manera otros dos impactos.

20 Todos los objetivos de iterbio sinterizados sobrevivieron a la prueba de estabilidad sin ningún daño.

25 Se considera que el iterbio-176 es útil para producir el radioisótopo Lu-177 que tiene aplicaciones en las imágenes médicas y la terapia del cáncer, pero que no puede almacenarse durante un largo período de tiempo debido a su corta vida media de aproximadamente 6,7 días. El Yb-176 se convierte en Lu-177 de acuerdo con la siguiente reacción:



30 Los resultados de la prueba indican que los objetivos de iterbio sinterizados obtenidos por el método de la presente invención son precursores útiles para la producción de Lu-177 en los tubos de instrumentación de un reactor nuclear durante el funcionamiento para producir energía.

35 El experto en la técnica conoce reacciones similares para la producción de otros radioisótopos a partir de diversos precursores de óxido de tierras raras.

REIVINDICACIONES

- 5 1. Un objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado para producir un radioisótopo en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear, caracterizado porque el objetivo sinterizado contiene cromo en una cantidad de 500 a 2000 µg/g, y Mg y/o Ca en una cantidad de 1000 a 6000 µg/g.
2. El objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado de acuerdo con la reivindicación 1, en donde el objetivo sinterizado tiene una densidad de al menos el 90 por ciento de la densidad teórica.
- 10 3. El objetivo de la reivindicación 1 o 2, en donde el óxido de metal de tierras raras se representa por la fórmula general R_2O_3 en donde R es un metal de tierras raras seleccionado del grupo que consiste en Nd, Sm, Y, Dy, Ho, Er, Tm, Yb y Lu.
- 15 4. El objetivo de la reivindicación 3, en donde el metal de tierras raras es Sm, Y, Ho o Yb, preferentemente Yb-176 o Yb-168.
5. El objetivo de las reivindicaciones 3 o 4, en donde el metal de tierras raras es monoisotópico.
- 20 6. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 5, en donde el objetivo contiene Mg en una cantidad de entre 1000 y 6000 µg/g.
7. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 6, en donde el objetivo sinterizado contiene aluminio en una cantidad de entre 500 y 8000 µg/g, preferentemente 500 a 6000 µg/g.
- 25 8. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 7, en donde el objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado consiste en el óxido de metal de tierras raras dopado con cromo en una cantidad de 500 a 2000 µg/g, Mg y/o Ca en una cantidad de 1000 a 6000 µg/g, y opcionalmente contiene aluminio en una cantidad de entre 500 y 8000 µg/g, e impurezas inevitables.
- 30 9. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 8, en donde el objetivo sinterizado tiene una densidad de al menos el 92 por ciento de la densidad teórica.
10. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 9, en donde el objetivo sinterizado tiene una porosidad de menos del 10 %, preferentemente menos del 5 %.
- 35 11. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 10, en donde el objetivo sinterizado tiene poros que tienen un tamaño menor que 100 µm, preferentemente menor que 80 µm, y con mayor preferencia menor que 70 µm.
- 40 12. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 11, en donde el objetivo sinterizado tiene un tamaño promedio del grano de 35 µm o más, preferentemente 40 µm o más.
- 45 13. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 12, en donde el objetivo sinterizado es esferoidal y tiene un diámetro en un intervalo de 1 a 5 mm, preferentemente de 1 a 3 mm.
- 50 14. El objetivo de cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 13, en donde el objetivo sinterizado es resistente a una presión de transporte neumática de 10 bar y/o una velocidad de impacto de 10 m/s.
- 55 15. Un método para preparar un objetivo de irradiación de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 14, que comprende las etapas de:
 - Proporcionar una mezcla en polvo que consiste en un óxido de metal de tierras raras, óxido de cromo y un aglutinante en donde el óxido de cromo está presente en la mezcla en polvo en una cantidad de 1000 a 3000 µg/g;
 - Preconsolidar la mezcla en polvo para formar gránulos que tengan un tamaño del grano menor que 500 µm, preferentemente menor que 450 µm, y consolidar la mezcla en polvo granulada para formar un cuerpo verde;
 - o
 - Granular la mezcla en polvo mediante la aglomeración en un tambor giratorio o en un disco giratorio para formar un cuerpo verde; y
 - Colocar el cuerpo verde en un soporte que comprende Mg y/o Ca y sinterizar a una temperatura de al menos 1700 °C para formar un objetivo de óxido de tierras raras sinterizado que tenga una densidad sinterizada de al menos el 90 % de la densidad teórica.
- 60 16. El método de la reivindicación 15, en donde el polvo del óxido de metal de tierras raras tiene una pureza mayor que el 99 %, con mayor preferencia mayor que el 99,9 %/TREO.
- 65

17. El método de las reivindicaciones 15 o 16, en donde el aglutinante es una sal metálica de un ácido graso, con mayor preferencia una sal de aluminio o calcio de un ácido graso, aún con mayor preferencia un estearato de aluminio, y con la máxima preferencia un diestearato de aluminio.
- 5 18. El método de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 17, en donde el aglutinante se añade a la mezcla en polvo en una cantidad de entre 0,01 a 0,1 por ciento en peso, preferentemente de 0,02 a 0,07 por ciento en peso.
- 10 19. El método de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 18, en donde la mezcla en polvo se preconsolida mediante el uso de una fuerza de prensado en un intervalo entre 10 y 50 kN, preferentemente de 25 a 35 kN para formar una barra o gránulo preconsolidado.
- 15 20. El método de la reivindicación 19, en donde la barra o gránulo preconsolidado se muele y tamiza para formar los gránulos.
- 20 21. El método de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 20, en donde se añade más aglutinante a los gránulos en una cantidad de entre 5 y 10 por ciento en peso, preferentemente 5 a 7 por ciento en peso.
22. El método de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 21, en donde los gránulos se moldean por compresión, preferentemente mediante el prensado hidráulico, con una fuerza de prensado en un intervalo de 0,1 a 10 kN, preferentemente de 0,5 a 2 kN.
- 25 23. El método de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 22, en donde el cuerpo verde se sinteriza en una atmósfera reductora que comprende hidrógeno y un gas inerte.
- 30 24. El método de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 23, en donde la cantidad total de Ca y/o Mg en el objetivo sinterizado no es mayor que 6000 µg/g y/o la cantidad total de aluminio no es mayor que 8000 µg/g.
- 35 25. El uso de un objetivo de óxido de metal de tierras raras sinterizado de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 14 para producir un radioisótopo en un tubo de instrumentación de un reactor de energía nuclear comercial durante el funcionamiento para producir energía.
- 40 26. El uso de la reivindicación 25, en donde el reactor de energía nuclear comercial comprende un sistema para generar radioisótopos en un recipiente de reactor nuclear en funcionamiento que comprende un subsistema de conducción del objetivo de irradiación que tiene medios para producir un fluido gaseoso presurizado que interactúa con los objetivos de irradiación sinterizados de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a la 14 para conducir los objetivos desde un subsistema de almacenamiento del objetivo hacia el tubo de instrumentación, y desde el tubo de instrumentación hacia un subsistema de extracción después de la irradiación.
- 45 27. El uso de la reivindicación 25 o 26, en donde un método para producir radioisótopos en el reactor nuclear en funcionamiento comprende insertar los objetivos sinterizados en un tubo de instrumentación que se extiende en el núcleo de un reactor por medio de aire presurizado, preferentemente a una presión de aproximadamente 7 a 30 bar, y exponer los objetivos sinterizados al flujo de neutrones que se encuentran en el reactor nuclear durante el funcionamiento, por un período de tiempo predeterminado, de manera que el objetivo sinterizado se convierte sustancialmente en un radioisótopo, y retirar el objetivo sinterizado y el radioisótopo producido del tubo de instrumentación.
- 50 28. El uso de cualquiera de las reivindicaciones 15 a la 27, en donde el óxido de metal de tierras raras es iterbio y el radioisótopo es Lu-177.