INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**Modelos analíticos para o desenvolvimento de alvos metálicos de alta
performance irradiados nos ciclotrons Cyclone 30 e
Cyclone 18 do IPEN-CNEN/SP**

Henrique Barcellos de Oliveira

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear – Aplicações.**

**Orientador:
Dr. Valdir Sciani**

São Paulo

16/12/2009

*À Maria Fernanda,
Maria Carolina e
Leonardo*

Maria Alves

Fonte de Inspiração.

Oldemar Amyris

Exemplo de Integridade.

*Especialmente para
Ana, Vera, Cristina, Fernando e Maurício.
Irmãs, irmãos e acima de tudo, amigos.*

Agradeço,

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade de execução deste trabalho.

Ao meu orientador Dr. Valdir Sciani.

Ao Sr. Jair Mengatti, da Diretoria de Radiofarmácia do IPEN.

Aos meus colegas e amigos da Instalação de Aceleradores Ciclotrons do IPEN, Sandra Regina, Abolafio, Adilson, Amaral, Clóvis, Decio, Hylton, Manoel, Marialva, Mauro, Osvaldo, Tarcísio, Vanderlei, Vladimir e Zanchetta.

Aos amigos e colegas do Serviço de Proteção Radiológica Andrade, Celso, Christovam e Zé Roberto.

Aos amigos e colegas do Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo, em especial ao Nei Gonçalves Brazão.

À todas as pessoas que direta ou indiretamente contribuíram para a consecução deste trabalho, meus sinceros agradecimentos.

*Henrique Barcellos de Oliveira
Dezembro de 2009*

**Modelos analíticos para o desenvolvimento de alvos metálicos de alta performance
irradiados nos ciclotrons Cyclone 30 e Cyclone 18 do IPEN-CNEN/SP**

Henrique Barcellos de Oliveira

RESUMO

Foram desenvolvidos modelos analíticos que descrevem os elementos básicos para irradiações de alvos metálicos em ciclotrons. Parâmetros importantes como valor máximo de corrente de feixe e potência térmica depositada sobre o alvo foram obtidos e confrontados com situações práticas. De forma totalmente inédita, foram determinados analiticamente as características encontradas em situações de intensos transientes térmicos, quando altas concentrações de prótons em uma pequena região do feixe provocam intensos gradientes de temperatura em pequenas regiões do alvo. A comparação dos resultados obtidos com aqueles encontrados na literatura mostraram que os modelos desenvolvidos são satisfatórios, tendo em vista todas as limitações do modelo proposto.

**Analytical models for development of high performance metal targets irradiated in
IPEN-CNEN/SP Cyclone 30 and Cyclone 18 cyclotrons**

Henrique Barcellos de Oliveira

ABSTRACT

Analytical models were developed that describe the basic elements for metal targets irradiation in cyclotrons. Important parameters such as maximum beam current value and thermal power deposited on target were obtained and compared with practical situations. In an unprecedented way, were determined analytically the features found in intense thermal transient situations, when high protons concentrations in a small region of the beam cause intense temperature gradients in small regions of the target. Comparing with results found in the literature showed that the developed models are satisfactory, in view of all limitations of the proposed model.

SUMÁRIO

APRESENTAÇÃO.....	12
O COMEÇO DE TUDO.....	15
RELEVÂNCIA DO TEMA.....	16
1. INTRODUÇÃO.....	18
1.1. RADIOISÓTOPOS E ACELERADORES DE PARTÍCULAS.....	20
1.2. PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS.....	22
1.3. ATIVIDADE ESPECÍFICA.....	23
1.4. TRAÇADORES RADIOATIVOS.....	26
1.5. APLICAÇÕES NA MEDICINA.....	27
1.6. UM POUCO DE HISTÓRIA.....	27
1.7. RADIOISÓTOPOS PARA IMAGENS.....	29
1.8. TERAPIAS COM RADIOISÓTOPOS.....	32
1.9. RADIOFÁRMACOS.....	34
1.10. APLICAÇÕES NA INDÚSTRIA.....	35
1.10.1 PROCESSAMENTO DE MATERIAIS.....	35
1.11. INSTRUMENTAÇÃO COM RADIOISÓTOPOS.....	36
1.12. SERVIÇOS E PRODUTOS DE CONSUMO.....	37
1.13. APLICAÇÕES BIOLÓGICAS E AMBIENTAIS.....	37
1.14. APLICAÇÕES NA AGRICULTURA.....	38
1.14.1. CONTROLE DE INSETOS E PRAGAS.....	39
1.14.2. FISIOLOGIA VEGETAL.....	39
1.15. RECURSOS HÍDRICOS.....	39
1.16. RESUMO.....	40
2. ACELERADORES DE PARTÍCULAS.....	43
2.1. INTRODUÇÃO.....	43
2.2. O ACELERADOR LINEAR.....	45
2.2.1. PRINCÍPIOS FÍSICOS DO LINAC.....	46
2.2.2. ACELERAÇÃO POR RADIOFREQUÊNCIA.....	47
2.2.3. ESTRUTURA DE UM LINAC.....	48
2.2.4. ALTO VÁCUO.....	48
2.2.5. QUADRUPOLO DE RADIOFREQUÊNCIA.....	49
2.2.6. O LINAC NA ATUALIDADE.....	49

2.3. DESENVOLVIMENTO DE CICLOTORONS.....	51
2.3.1. PRINCÍPIOS FÍSICOS DO CICLOTRON.....	51
2.3.2. ACELERAÇÃO POR RADIOFREQUÊNCIA.....	52
2.3.3. CAMPO MAGNÉTICO PARA ÓRBITA CIRCULAR.....	54
2.3.4. FONTES DE ÍONS.....	55
2.3.5. SISTEMA DE VÁCUO.....	56
2.3.6. EXTRAÇÃO DO FEIXE DE PARTÍCULAS.....	58
2.3.7. CICLOTRONS NA ATUALIDADE.....	60
2.3.8. ÍONS POSITIVOS OU ÍONS NEGATIVOS.....	60
2.3.9. EXTRAÇÃO DO FEIXE.....	61
2.3.10. ENERGIA DAS PARTÍCULAS.....	62
2.4. OUTROS TIPOS DE ACELERADORES.....	63
2.4.1. ACELERADOR TANDEM.....	63
2.4.2. ACELERADOR VAN DE GRAAFF.....	64
2.5. CICLORONS SUPERCONDUTORES.....	66
2.6. ESCOLHA DE UM ACELERADOR.....	66
2.6.1. RENDIMENTO NAS PRODUÇÕES DE RADIOISÓTOPOS.....	68
2.6.2. CICLOTRONS COMERCIAIS.....	69
2.6.3. CUSTOS DE OPERAÇÃO E MANUTENÇÃO.....	69
2.6.4. MANUTENÇÃO.....	70
2.7. CONCLUSÕES.....	70
3. TEORIA DE PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS.....	72
3.1. MODELOS DE REAÇÕES NUCLEARES.....	74
3.2. NÚCLEOS COMPOSTOS.....	74
3.3. CINEMÁTICA DAS REAÇÕES.....	75
3.3.1. O VALOR “Q”.....	76
3.4. NOMENCLATURA.....	78
3.5. ESTIMATIVAS DO MODELO.....	78
3.5.1. TAXAS DE PRODUÇÃO E FUNÇÃO DE EXCITAÇÃO.....	79
3.5.2. FATOR DE SATURAÇÃO E RENDIMENTO PRÁTICO.....	82
3.5.3. TAXA DE PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS.....	82
3.5.4. FATOR DE SATURAÇÃO.....	83
3.5.5. O EXEMPLO DO ¹⁸ F.....	85
3.6. CONCLUSÕES.....	86
4. TECNOLOGIA DE ALVOS.....	87
4.1. INTRODUÇÃO.....	87
4.2. TIPOS DE ALVOS E PORTA-ALVOS.....	89

4.2.1. ALVOS INTERNOS.....	89
4.2.2. ALVOS EXTERNOS.....	91
4.2.3. ALVOS SÓLIDOS.....	91
4.2.4. ALVOS LÍQUIDOS.....	92
4.2.5. ALVOS GOSOSOS.....	94
4.3. FÍSICA APLICADA NA TECNOLOGIA DE ALVOS.....	96
4.3.1. INTERAÇÕES DE PARTÍCULAS CARREGADAS COM A MATÉRIA.....	96
4.3.2. ALCANCE E PODER DE FREAMENTO.....	98
4.3.3. DISTRIBUIÇÃO DE ENERGIA NO FEIXE.....	101
4.3.4. MÚLTIPLOS ESPALHAMENTOS.....	103
4.4. QUÍMICA NA TECNOLOGIA DE ALVOS.....	105
4.4.1. INTERAÇÕES QUÍMICAS NO ALVO.....	105
4.4.2. ATIVIDADE ESPECÍFICA (AE) E CONTAMINANTES.....	109
4.5. TEMPERATURA DO ALVO.....	111
4.6. DANOS POR RADIAÇÃO.....	112
4.7. ENGENHARIA DE ALVOS.....	113
4.7.1. TRANSFERÊNCIA DE CALOR.....	113
4.7.2. TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR RADIAÇÃO.....	114
4.7.3. TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR CONDUÇÃO.....	116
4.7.4. TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR CONVECÇÃO.....	118
4.8. MATERIAIS PARA PORTA-ALVOS.....	124
4.9. DENSIDADE DE POTÊNCIA EM ALVOS INCLINADOS.....	128
4.10. PORTA-ALVO PARA PRODUÇÃO DE ^{201}TI	128
4.11. PORTA-ALVO DE GÁS PARA PRODUÇÃO DE ^{11}C	134
4.12. CONCLUSÕES.....	140
5. IRRADIAÇÕES DE ALVOS SÓLIDOS.....	141
5.1. MODELOS DE TRANSFERÊNCIA DE CALOR.....	141
5.2. PERFIL DO FEIXE.....	143
5.3. OSCILAÇÃO DO FEIXE DURANTE A IRRADIAÇÃO.....	146
5.4. EFEITOS DO TRANSIENTE TÉRMICO.....	148
5.5. APRESENTAÇÃO DO PROBLEMA.....	151
5.6. O ESTADO ESTACIONÁRIO.....	154
5.7. O TRANSIENTE TÉRMICO.....	161
6. FUNÇÕES DE EXCITAÇÃO PARA REAÇÕES (p,xn).....	168
6.1. BARREIRA DE POTENCIAL ELETROSTÁTICO.....	168
6.2. REAÇÕES NUCLEARES.....	170

6.2.1. CONSERVAÇÃO DE ENERGIA.....	170
6.2.2. SEÇÃO DE CHOQUE DE REAÇÕES NUCLEARES.....	171
6.2.3. CÁLCULO DO RENDIMENTO.....	172
6.2.4. FATOR DE SATURAÇÃO.....	174
6.3. CARACTERÍSTICAS DOS RADIOISÓTOPOS ESTUDADOS.....	176
6.3.1. GÁLIO-67.....	176
6.3.1.1. USO.....	176
6.3.1.2. DECAIMENTO.....	177
6.3.1.3. REAÇÕES NUCLEARES.....	177
6.3.1.4. PREPARAÇÃO DO ALVO.....	177
6.3.2. COBRE-64.....	178
6.3.2.1. USO.....	178
6.3.2.2. DECAIMENTO.....	178
6.3.2.3. REAÇÕES NUCLEARES.....	179
6.3.3. TÁLIO-201.....	179
6.3.3.1. USO.....	179
6.3.3.2. DECAIMENTO.....	180
6.3.3.3. REAÇÕES NUCLEARES.....	180
6.4. SEÇÃO DE CHOQUE E PROBABILIDADE DE REAÇÃO.....	180
6.4.1. SOLUÇÕES NUMÉRICAS.....	182
7. CONCLUSÕES.....	184
7.1. ANÁLISES TÉRMICAS PARA ALVOS METÁLICOS IRRADIADOS.....	184
7.2. SEÇÃO DE CHOQUE E PROBABILIDADE DE REAÇÃO.....	185
REFERÊNCIAS.....	186

APRESENTAÇÃO

Em quase todos os países do mundo pode-se encontrar aplicações para os radioisótopos, contribuindo de forma significativa tanto para a melhoria da produção industrial quanto da saúde de maneira geral. De forma global, o número de procedimentos médicos que envolvem radioisótopos está em franco crescimento, e estes procedimentos requerem uma variedade cada vez maior de substâncias marcadas com isótopos radioativos, além é claro de quantidades cada vez maiores daqueles já existentes. O uso dos radioisótopos na indústria é muito diversificado, de forma que a importância relativa para diversos setores é muito diferente. Em geral, a grande utilidade e versatilidade dos radioisótopos só aparece quando não há alternativas substitutas.

A Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) tem auxiliado seus Estados Membros (o Brasil é um deles), a desenvolver tecnologias para a produção de radioisótopos e radiofármacos, processamentos radioquímicos, transporte com segurança de material radioativo, e claro, o uso prático e consciente de substâncias radioativas.

Em 1971 a AIEA, publicou um relatório técnico intitulado “Produção de Radioisótopos e Controle de Qualidade”, e este relatório foi até bem pouco tempo atrás a única fonte de informações de referência utilizada por quase todos os Estados membros em seus programas de produção de radioisótopos. Em 2003 a AIEA lançou o “Manual de Produção de Radioisótopos em Reatores” onde constam importantes informações sobre 48 radioisótopos produzidos em reatores nucleares além de grande quantidade de material sobre processamento radioquímico destas substâncias.

Em 1998, a AIEA publicou o primeiro diretório de ciclotrons utilizados para a produção de radioisótopos, e em 2002 e 2006 foram publicadas as versões revistas deste diretório.

De 20 anos para cá viu-se a instalação de um grande número de novos ciclotrons para produções de radioisótopos. Muitos destes, dedicados à produção de um

único isótopo ou grupo de isótopos. Entretanto, a maioria deles tem capacidade extra para produção de muitos outros isótopos úteis: esta capacidade precisa ser explorada o quanto antes.

A AIEA tem ampliado seu apoio de várias formas aos Estados membros para que obtenham ou melhorem as tecnologias de produção de radioisótopos de ciclotrons. Publicações de relatórios que abranjam os diferentes aspectos de produção de radioisótopos utilizando ciclotrons é uma atividade que tem sido identificada e considerada como deficitária.

Em 2004, um grupo de usuários e pesquisadores identificaram a necessidade de uma publicação específica para ciclotrons, similar ao “Manual para Produção de Radioisótopos em Reatores”, cobrindo todos os isótopos de interesse, tanto os usados correntemente, quanto aqueles que apresentavam algum potencial de uso. Com isto, 49 isótopos foram identificados, e 20 deles foram agrupados devido à sua grande utilidade imediata.

De posse destas primeiras informações, foi decidido então a produção e publicação de um relatório cobrindo todas as informações relevantes e necessárias para a produção destes radioisótopos: o nível de informação corresponde à utilidade e necessidade de cada isótopo. Consequentemente, este relatório abrange dados sobre as características de decaimento nuclear como a meia-vida, modo de decaimento, energia das partículas emitidas, abundâncias, reações nucleares e as funções de excitação para cada isótopo, medidas experimentalmente com precisão crescente, ano após ano. Os dados nucleares apresentados neste relatório inicial foram adaptados dos bancos de dados tanto da Agência Internacional de Energia Atômica quando do *Brookhaven National Laboratory*.

Para os isótopos mais usados, dados adicionais sobre preparação de alvos, processamento radioquímico, recuperação de material enriquecido e outras especificações mais detalhadas, também foram incluídas neste relatório.

Entretanto, daquela época até os dias atuais, os dados nucleares disponíveis

não foram atualizados, salvo poucas exceções, logo, a elaboração dissertações e teses como esta deveriam ser mais incentivadas, impulsionadas, subsidiadas, de forma que os dados disponíveis sejam cada vez mais precisos e confiáveis, além é claro, da formação de recursos humanos para pesquisa, desenvolvimento e produção dos radioisótopos já estudados e largamente empegados, como daqueles que ainda irão surgir dos laboratórios de pesquisas dos Institutos e das Universidades.

O COMEÇO DE TUDO

O desenvolvimento da tecnologia nuclear foi uma das mais significantes realizações do século vinte. Os trabalhos pioneiros de Marie e Pierre Curie com a descoberta de substâncias cujas propriedades não eram até aquela época conhecidas, e para as quais eles cunharam o nome radioativo, abriram muitos novos campos de oportunidades. A descoberta de Marie e Pierre Curie foi o resultado da crença de Marie de que um minério normalmente encontrado na Polônia continha outras substâncias mais ativas do que o urânio. Após alguns meses de pesquisas com este minério em 1898, Marie Curie isolou completamente dois novos elementos. Ela chamou o primeiro de polônio e homenagem à sua terra natal, o segundo ela chamou de rádio devido à sua intensa radioatividade.

Aplicações práticas em pesquisas científicas de radioisótopos deram sequência a estas descobertas até quase o final dos anos 1930. Contudo, devido à pouca ocorrência de isótopos naturalmente radioativos o alcance destes estudos estavam severamente limitados. O pleno potencial de todas as descobertas feitas até então nunca puderam de fato ser verificadas ou até mesmo utilizadas, até que isótopos radioativos pudessem ser produzidos de forma artificial.

O primeiro grande avanço ocorreu no início dos anos 1930, quando Ernest Lawrence construiu o primeiro acelerador ciclotron, em Berkeley na Califórnia. Com esta nova máquina, acelerando dêuterons até velocidades muito altas, tornou-se possível provocar uma instabilidade nuclear nunca antes alcançada, e que hoje se sabe que é pré requisito para a radioatividade.

Direcionando um feixe de dêuterons rápidos sobre um alvo de carbono, Lawrence induziu uma reação que resultou na formação de um radioisótopo com meia-vida de 10 minutos, e deste dia em diante, o mundo nunca mais foi o mesmo.

RELEVÂNCIA DO TEMA

Com a crescente demanda por radioisótopos de ciclotrons, aliada à crise de fornecimento do ^{99m}Mo , substância produzida em reatores nucleares e responsável por mais de 85% de todos os procedimentos de diagnósticos em medicina nuclear, novas rotas e novos métodos de produção de radioisótopos que possam de alguma forma minimizar estes efeitos devem receber extenso incentivo, tanto por parte das autoridades como por parte dos institutos de pesquisas, além da própria comunidade médica envolvida.

A muito se sabe que a molécula de cloreto de tálio marcada com ^{201}Tl é um excelente radiofármaco para estudos das funções cardíacas, especialmente do miocárdio, para pacientes com doenças crônicas do coração ou para aqueles que saíram de algum tipo de ataque do coração. Mas devido ao alto custo de produção, o ^{201}Tl acabou sendo vagarosamente substituído pelo ^{99m}Mo , cujo preço no mercado internacional é muito mais acessível, principalmente para países em desenvolvimento como o Brasil.

A falta de ^{99m}Mo nos mercados internacionais acabou por elevar a demanda pelo ^{201}Tl , conseqüentemente, muitos daqueles centros produtores de radioisótopos de ciclotrons que já não mais produziam este isótopo, tiveram que reativar suas plantas de produção de tálio para satisfazer esta demanda.

Com o Brasil isto não foi diferente. O Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN deixou de produzir ^{201}Tl em 2007, dedicando totalmente seus dois ciclotrons para atender a demanda nacional de ^{123}I e ^{18}F -FDG, mas algumas produções experimentais de ^{201}Tl tem sido feitas semanalmente.

A motivação principal do presente trabalho é a de propor métodos teóricos, que possam servir de subsídio para projetos e construções de novos dispositivos de irradiação, novos modelos de alvos, que permitam irradiações com correntes de feixe mais elevadas, minimizando com isto os tempos de irradiação e ao mesmo tempo maximizando os rendimentos finais, ou seja, maiores atividades específicas. Este é o “Estado da Arte” em desenvolvimento de alvos e porta-alvos para ciclotrons.

Os modelos fenomenológicos apresentados estão focados nos aspectos de transporte de calor através de alvos metálicos.

Os resultados obtidos mostram soluções analíticas para o perfil de transiente de temperatura tanto na superfície quanto no interior de alvos metálicos irradiados com altas correntes de feixe. Não há na literatura precedente na obtenção destes resultados específicos, sendo que este trabalho é pioneiro ao abordar este problema por este prisma.

O zinco é um metal largamente usado nas produções de ^{67}Ga muito útil para a medicina nuclear por fornecer informações precisas sobre neoplasias em tecidos moles e surgimento de alguns tipos de processos infecciosos.

O níquel é usado na produção do ^{64}Cu que é um radioisótopo de grande potencial para a medicina nuclear, que ainda se encontra e fase de experimentação, mas devido aos seus dois decaimentos beta (mais e menos), tem grande importância para alguns tipos de terapia.

O tálio natural é usado na produção do ^{201}Tl que é um radioisótopo largamente empregado em cardiologia nos estudos de perfusão do miocárdio, bem como análises das funções cardíacas durante intensos esforços físicos ou em situações de pós-operatório. Com a atual crise de fornecimento do ^{99}Mo espera-se um significativo crescimento na procura pelo ^{201}Tl .

Desta maneira, espera-se que este trabalho possa contribuir para o campo de conhecimento em questão e que seja de relevância em seu círculo de aplicações práticas imediatas.

1. INTRODUÇÃO

A invenção e construção dos primeiros aceleradores ciclotrons na década de 30 do século passado e a realização dos primeiros experimentos de transmutação nuclear empregando este novo equipamento resultou em aplicações para medicina, indústria e agricultura, além das pesquisas em ciências básica e aplicada.

As aplicações médicas e industriais de radioisótopos têm mostrado um significativo aumento nas últimas duas décadas¹, e um dos fatores que mais contribuíram para este fato tem sido a disponibilidade de um número cada vez mais elevado de aceleradores do tipo ciclotron, construídos e dedicados única e exclusivamente para a produção de radioisótopos para o propósito de aplicações na medicina nuclear. Atualmente estes aceleradores podem acelerar partículas a energias que variam de alguns MeV até centenas de MeV, além de altas correntes de feixe, o que os torna aptos a produzirem grandes quantidades (altas atividades específicas) de radioisótopos em um curto intervalo de tempo.

Após o final da Segunda Grande Guerra, a maioria dos radioisótopos em uso eram produzidos em reatores nucleares. A produção de radioisótopos em aceleradores ciclotron para aplicações médicas só foi reaparecer em maior escala na década de 1950, após a descoberta de que o ^{201}Tl poderia ser usado com excelentes resultados na detecção de perfusão do miocárdio¹. O cloreto de tálio marcado com ^{201}Tl continua como referência para medidas do fluxo sanguíneo no coração, apesar do $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ser empregado em maior escala devido ao custo menor e grande disponibilidade. O desenvolvimento do flúor-deoxiglicose (^{18}FDG) em meados de 1970 e seu uso no estudo do metabolismo da glicose pelo corpo humano foi o maior avanço, levando ao desenvolvimento da tomografia por emissão de pósitrons¹ (PET - *Positron Emission Tomography*). O uso do ^{18}FDG em conjunto com um tomógrafo PET fornece imagens de alta qualidade do cérebro, para estudos de anomalias funcionais, do coração, para o estudo de viabilidades funcionais, e tumores, na detecção de metástases. Em seguida, um grande número de outros radiofármacos marcados com isótopos radioativos foram desenvolvidos, e a busca de

novos e mais eficientes compostos continuou até os dias de hoje. Ao lado da tomografia PET e da tomografia computadorizada por emissão de fóton único (SPECT – *Single Photon Emission Computed Tomography*) isótopos para diagnósticos por imagens foram também encontrando uma ampla variedade de aplicações. Um exemplo é o uso de ciclotrons com altas correntes de feixe para produção do ^{103}Pd que são largamente empregados em braquiterapia¹. Outros exemplos são as produções de isótopos emissores de partículas alfa, como o ^{211}At e o ^{213}Bi , que são direcionados para terapias de câncer.

Nos últimos 20 anos tem-se observado um crescimento substancial no uso de aceleradores ciclotron para produção de isótopos radioativos, o que pode ser comprovado pelo grande número destas máquinas que tem sido instaladas em várias localidades, notadamente nos países mais desenvolvidos, mas também em alguns dos países em desenvolvimento, em particular no Brasil, onde atualmente existem dez aceleradores em operação ou em fase de comissionamento junto à CNEN, sendo dois no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) em São Paulo, dois no Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) no Rio de Janeiro, um em Porto Alegre, um no Hospital das Clínicas da USP em São Paulo, um no Hospital Universitário da Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP) em Campinas, um no Centro de Desenvolvimento de Tecnologia Nuclear (CDTN) em Belo Horizonte, um no Centro Regional de Ciências Nucleares (CRCN) em Recife e um na Clínica Villas Boas em Brasília.

De acordo com a Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), estima-se que haja atualmente mais de 350 aceleradores ciclotrons disponíveis e em operação em todos os seus Estados Membros até o final de 2008. Embora a produção de outros isótopos diferentes do ^{18}F usando estes ciclotrons seja limitada ou pela energia das partículas aceleradas ou pela corrente de feixe ou por ambos, seu uso ainda pode ser indicado para as produções de um grande número de outros isótopos muito úteis tanto para a medicina quanto para a indústria, tais como o ^{64}Cu e o ^{124}I , dentre outros.

A AIEA tem oferecido suporte para muitos de seus membros de forma a poderem adquirir tanto aceleradores ciclotrons como também a tecnologia necessária para a produção rotineira de radioisótopos destinados principalmente a aplicações médicas, para

diagnósticos de um vasto leque de doenças como também para alguns tipos de terapias.

1.1. RADIOISÓTOPOS E ACELERADORES DE PARTÍCULAS

O desenvolvimento da tecnologia nuclear foi uma das mais significantes conquistas do século 20. A tecnologia nuclear é atualmente empregada em quase todas as áreas das atividades do homem, desde a medicina, a indústria de transformação e construção, passando pela indústria de alimentos e bens de consumo doméstico, além da produção de energia elétrica, sendo que mais de 16% das necessidades mundiais são atendidas por esta forma de geração. A tabela 1.1 mostra algumas das aplicações mais comuns da tecnologia nuclear na atualidade¹.

Tabela 1.1 - Aplicações comuns de radioisótopos.

Radioisótopo	Aplicações
²⁴¹ Am	Detectores de fumaça para residências e escritórios; medidas dos níveis tóxicos de chumbo em tinta seca; garantir a espessura uniforme do material na produção de aço e papel; auxílio na localização de poços de petróleo.
¹⁰⁹ Cd	Usado para analisar ligas metálicas na triagem de sucatas.
¹³⁷ Cs	Usado no tratamento de câncer; calibração de equipamentos usados nas medidas das doses corretas em pacientes sujeitos a radiofármacos radioativos; medir e controlar o fluxo em oleodutos; indicar aos prospectores de poços de petróleo se estão em áreas de areia; assegurar o nível correto de enchimento de embalagens de alimentos, medicamentos, líquidos e outros produtos (as embalagens e seus conteúdos não se tornam radioativos após os processos).
⁴⁷ Ca	Usado no auxílio de estudos da função e formação óssea.
¹¹ C e ¹⁴ C	Usados para garantir que potenciais novos fármacos serão metabolizados sem a formação de subprodutos nocivos.
⁵¹ Cr	Usado na investigação das células vermelhas do sangue.
⁵⁷ Co	Utilizado no diagnóstico da anemia perniciososa.
⁶⁰ Co	Usado na esterilização de instrumentos cirúrgicos; aumentar a segurança e confiabilidade dos queimadores industriais a óleo combustível; preservação de frutas e especiarias.

A primeira aplicação prática de um radioisótopo foi feita em 1911 por um jovem estudante húngaro chamado G. De Hevesy^a que trabalhava com materiais

^a De Hevesy foi laureado com o Prêmio Nobel de Química de 1943. Detalhes de sua biografia podem ser encontrados em <http://www.nobelprize.org>

naturalmente radioativos, em Manchester, Reino Unido. Não dispondo de muitos recursos financeiros, ele morava próximo ao cais do porto e lá fazia suas refeições junto aos carregadores de navios e estivadores. Ele suspeitou que algumas destas refeições poderiam ser feitas com as sobras de dias anteriores e até mesmo semanas, bastando apenas que fossem “esterilizadas e conservadas pela radiação”. Para testar e confirmar suas suspeitas, de Hevesy colocara uma pequena quantidade de material radioativo próximo a restos de uma refeição que ele acabara de fazer. Dias depois, usando um detector de radiação rudimentar (um eletroscópio de folhas de ouro) para medir os níveis de radioatividade, verificou que os alimentos não estavam radioativos: provou aquela refeição comprovando suas suspeitas de que a radioatividade poderia ser empregada para esterilização e conservação de alimentos e utensílios diversos.

A utilização de radioisótopos nas ciências físicas e biológicas podem ser divididas em três categorias gerais: Imagens, Radioterapia e Radiomarcadores (ou Radiotraçadores). A categoria Imagens pode ainda ser dividida em duas subcategorias, SPECT e PET. Estes temas não estão no escopo deste trabalho, por isto serão tratados de forma muito breve.

Para serem usados como traçadores, os radioisótopos e seus compostos devem obedecer aos seguintes princípios:

- a) o traçador se comporta ou interage com o sistema em estudo de forma bem conhecida e reprodutível;
- b) o traçador não altera ou perturba o sistema sob estudo de qualquer forma mensurável;
- c) a concentração do traçador pode ser medida em qualquer instante.

Em radioterapia interna para o tratamento de neoplasias e outras doenças, o princípio b) não é válido, visto que o objetivo da inserção do radioisótopo é o de emitir radiação suficiente para causar danos aos tecidos tumorais. Por outro lado, de forma que a substância radiotóxica seja localizada, ela deve possuir um comportamento químico bem conhecido sem perturbar consideravelmente o meio à sua volta. A tabela 1.2 traz alguns radioisótopos típicos usados em cada uma destas categorias¹.

Tabela 1.2 - radioisótopos típicos e suas aplicações.

Elemento	Aplicação
^{11}C	É um radioisótopo emissor de pósitrons com meia-vida de 20,3 minutos usado em tomografia PET. Geralmente é produzido na forma de $^{11}\text{CO}_2$, que pode ser convertido em uma grande variedade de substâncias marcadas, como $^{11}\text{CH}_3\text{I}$ ou H^{11}CN . Sabendo que a totalidade de todos os compostos biológicos contém carbono, o ^{11}C encontra amplo emprego como elemento traçador em tomografia PET. De fato, atualmente há mais de duas dezenas de substâncias marcadas com ^{11}C .
^{13}N	Com meia-vida de 10 minutos, é também um radioisótopo emissor de pósitrons. Entretanto, além de sua utilização para medidas do fluxo sanguíneo no coração (como $^{13}\text{NH}_4^+$), é empregado também em tomografia PET. É também largamente empregado em estudos botânicos para determinar a cinética de absorção do nitrogênio em uma variedade de sistemas vegetais sob diversas condições.
^{123}I	Com meia-vida de 13,1 hora, é um radioisótopo emissor de raios gama com energia de 159 keV, o que é ideal para câmeras SPECT que foram otimizadas para o $^{99\text{m}}\text{Tc}$ que emitem raios gama com energia de 140 keV. Além disto, a facilidade com que um átomo de iodo pode ser introduzido em um composto, torna o ^{123}I um radiofármaco muito versátil para tomografias SPECT.
^{186}Re	É um radioisótopo emissor de elétrons (emissor β^-) com baixa abundância de raios gama de 140 keV de energia. Emitindo partículas β^- de 1 MeV de energia e com 90 horas de meia-vida, O rênio torna-se um nuclídeo radioterápico muito promissor para terapias de câncer. Quimicamente análogo ao tecnécio, o rênio possui propriedades similares ao $^{99\text{m}}\text{Tc}$, podendo ser usado com as mesmas substâncias marcadas desenvolvidas para obtenção de imagens SPECT de tumores.

A maioria dos radioisótopos usados como traçadores e empregados na medicina nuclear para diagnósticos *in vivo* deve ter meia-vida relativamente curta (menor que algumas horas até poucos dias). As vantagens em usar radioisótopos de meia-vida curta estão associadas à baixa dose de radiação a que estão submetidos tanto os pacientes quanto os médicos, enfermeiros e técnicos envolvidos, além dos problemas da eliminação dos resíduos radioativos que são minimizados, se não, eliminados. As desvantagens são a necessidade de um acelerador ciclotron nas proximidades ou dentro da menor distância possível, que possa ser coberta pelo transporte em curto intervalo de tempo, compatível com a meia-vida do isótopo, e também procedimentos químicos rápidos para a formação de substâncias marcadas de maior complexidade.

1.2. PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS

A produção de radioisótopos pode ser considerada uma operação de

alquimia, onde átomos de um elemento são transformados em átomos de outros elementos. Esta transformação envolve uma alteração no número de prótons e/ou nêutrons no núcleo, que usualmente é chamado de “alvo”. Se um nêutron é adicionado sem a emissão secundária de partículas, então o núcleo resultante terá as mesmas propriedades químicas no núcleo alvo. Se, por outro lado, o núcleo alvo é bombardeado por partículas carregadas, como prótons por exemplo, o núcleo resultante será de um elemento químico diferente. Os tipos exatos de reações nucleares que sofre um núcleo alvo depende de vários parâmetros que incluem o tipo de elemento que está sendo bombardeado e principalmente da energia das partículas incidentes.

A energia de ligação dos núcleons (prótons ou nêutrons) dentro do núcleo atômico é da ordem de 8 MeV em média. Portanto, se as partículas que bombardeiam o núcleo tiver mais do que esta quantidade de energia, a reação resultante provocará a ejeção de outras partículas do núcleo alvo. Seleccionando de forma cuidadosa o núcleo alvo, as partículas de bombardeamento e sua energia, é possível produzir um radioisótopo específico.

1.3. ATIVIDADE ESPECÍFICA

Atividade Específica (AE) é uma medida do número de átomos radioativos ou moléculas quando comparada com o número total destes átomos ou moléculas presentes em uma dada amostra¹. A Atividade Específica é usualmente expressa em termos de unidades de radiação por unidade de massa. As unidades tradicionais são Ci/mol (ou Ci/g) ou uma fração disso (atualmente expresso como GBq/mol). Se apenas átomos de radioisótopos estiverem presentes, então esta amostra é dita ser livre de carregadores. Por exemplo, uma molécula marcada com ^{123}I será livre de carregadores desde que não existam isótopos estáveis de iodo nesta molécula. Entretanto, na maioria dos casos práticos, sempre haverá uma pequena quantidade de átomos ou moléculas não radioativos presentes na amostra, que tem um comportamento químico similar e podem agir como pseudo-carregadores. A AE de um isótopo ou radiofármaco é importante na determinação dos efeitos químicos ou biológicos que a substância pode causar no sistema que está sob

investigação.

O número N de átomos radioativos em uma amostra pode ser calculado pela relação:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (1.1)$$

onde dN/dt é a taxa de desintegração por unidade de tempo e λ é a constante de decaimento em s^{-1} ($\lambda = \ln(2)/t_{1/2}$).

O uso de reatores nucleares para produção de radioisótopos se baseia no fato de que durante o processo de fissão em um reator, há a produção de um grande número de nêutrons que são “termalizados” pelo material refrigerante do núcleo. Estes nêutrons termalizados são ideais para iniciar reações do tipo (n,γ) . Em alguns reatores, nêutrons de alta energia são usados para produzir radioisótopos via outras reações que envolvem a ejeção de uma partícula carregada, por exemplo, reações (n,p) ou (n,α) . O processo de fissão é uma fonte de radioisótopos largamente usados nos dias de hoje, como por exemplo, ^{90}Sr , ^{99}Mo , ^{131}I e ^{133}Xe , todos produzidos em reatores por fissão¹, e podem ser separados dos elementos combustíveis, ou de alvos de ^{235}U enriquecido colocados próximos ao núcleo do reator para produções diretas de radioisótopos. A maior desvantagem no uso de produtos de fissão são as grandes quantidades de resíduos radioativos gerados, e a grande quantidade de radioisótopos produzidos, incluindo outros radioisótopos da espécie desejada. Na produção de ^{131}I , os isótopos ^{127}I e ^{129}I são também formados, o que reduz a AE.

Embora os primeiros radioisótopos produzidos de forma artificial tenham sido feitos nos aceleradores ciclotron desenvolvidos por Ernest O. Lawrence e colaboradores na década de 1930, mais de 30 anos se passaram até que radioisótopos produzidos nestes mesmos aceleradores começassem a desempenhar um papel mais importante na medicina, com a produção dos primeiros radiofármacos¹. A principal vantagem dos aceleradores nas produções de radioisótopos, quando comparados com os

reatores nucleares, são o baixo custo de construção, montagem e operação e as altas Atividades Específicas. Outra vantagem significativa é que uma pequena quantidade de resíduos radioativos são gerados das reações com partículas carregadas.

Ciclotrons projetados para produções de radioisótopos de uso médico eram inicialmente capazes de acelerar prótons, dêuterons, $^3\text{He}^{2+}$ e partículas α . Entretanto, os principais radioisótopos atualmente usados em aplicações médicas podem todos ser produzidos pelo bombardeamento por prótons. A simplicidade de projeto destes aceleradores de prótons resultou em ciclotrons capazes de gerar dois ou mais feixes simultâneos de prótons com diferentes energias e intensidades. Os ciclotrons modernos são completamente controlados por computador e podem operar de forma contínua por muitos dias.

Como mostrado na Tabela 1.3, os radioisótopos para tomografia PET são produzidos por bombardeamento de alvos com prótons ou dêuterons. Sabendo que a maioria das pesquisas com tomografias PET foram primeiramente realizadas nos Laboratórios de Universidades da Europa, Estados Unidos e Japão, e que estes laboratórios dispunham com facilidade de aceleradores ciclotrons de prótons ou dêuterons, estas reações passaram então a ser a norma, pois foi por meio destas reações que a maioria dos radioisótopos de interesse médico foram produzidos. No entanto, no início da década de 1980, os ciclotrons compactos tornaram-se possíveis, sendo projetados e construídos especificamente para produções de radioisótopos para tomografias PET, podendo acelerar prótons ou dêuterons, começaram a ser comprados e instalados em muitos hospitais e clínicas, tanto governamentais quanto privadas.

O maior problema com estes ciclotrons compactos que aceleram apenas prótons reside no fato de que, em muitos casos, o material do alvo deve ser enriquecido (aumentando consideravelmente os custos) para que uma quantidade suficiente do radioisótopo de interesse seja gerada.

Tabela 1.3 – Emissores de pósitrons mais comuns e suas reações de produção¹.

radioisótopo	$t_{1/2}$ (min)	Decaimento	Reação	Energia (MeV)
^{11}C	20.3	β^+	$^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)$	11 – 17
^{13}N	9.97	β^+	$^{16}\text{O}(\text{p}, \alpha)$	19
			$^{15}\text{N}(\text{p}, \text{n})$	11
^{15}O	2.03	β^+	$^{14}\text{N}(\text{p}, 2\text{n})$	6
			$^{16}\text{O}(\text{p}, \text{pn})$	>26
^{18}F	110	β^+	$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})$	11 – 17
			$^{\text{nat}}\text{Ne}(\text{d}, \alpha)$	8 - 14

1.4. TRAÇADORES RADIOATIVOS

O termo traçador radioativo se refere aos átomos ou moléculas marcados com isótopos radioativos e que são usados para seguir (traçar) um órgão ou função de um sistema orgânico, seja uma planta ou animal, ou ainda um processo físico-químico¹. Inicialmente os traçadores radioativos eram isótopos de radioatividade natural ou congêneres químicos destes elementos. Os primeiros exemplos de radiotraçadores foram o ^{131}I usado para verificar a captação deste elemento pela tireoide, e a utilização de ^{32}P para controle do metabolismo celular.

Isótopos radioativos de sódio e potássio (^{24}Na , ^{42}K) tem sido amplamente empregados para medidas das quantidades destes elementos no interior do corpo humano, empregando para tanto a técnica de diluição isotópica. Análise por diluição isotópica envolve a adição de uma certa quantidade de uma substância (sendo bem determinadas sua massa e sua AE), a uma mistura contendo uma quantidade desconhecida da substância, e tomando uma parte da mistura determinando assim a nova AE da substância sob investigação. Pode ser mostrado que a massa da substância de interesse na mistura desconhecida é expressa por:

$$M = M_1 \left(\frac{AE_1}{AE_2} - 1 \right) \quad (1.2)$$

onde M é a massa da substância no sistema sob investigação, e AE_1 e AE_2 são as Atividades Específicas do traçador adicionado antes e após a adição ao sistema, respectivamente, enquanto M_1 é a massa incrementada ao sistema.

Este método tem uma série de aplicações, especialmente em análises de elementos traçadores feitas *in vivo*.

1.5. APLICAÇÕES NA MEDICINA

A medicina nuclear faz uso do fato de que certos radioisótopos emitem raios γ com energia suficiente para serem detectados fora do corpo humano.

Se radioisótopos são ligados a moléculas biologicamente ativas, os compostos resultantes são chamados de radiofármacos. Podem ser localizados tanto em certos tecidos do corpo como seguir uma determinada rota bioquímica. A seguir serão apresentados alguns usos de substâncias radioativas para o diagnóstico ou tratamento de patologias humanas.

1.6. UM POUCO DE HISTÓRIA

A Medicina Nuclear tem suas origens no trabalho pioneiro do físico húngaro de Hevesy, que em 1924, usando isótopos radioativos de chumbo como traçadores, fez inúmeros estudos em ossos. Pouco tempo depois, Stevens fez injeções intravenosas de cloreto de rádio para estudar linfomas malignos. A invenção do ciclotron^{13,14} por Ernest O. Lawrence em 1932 tornou possível a produção de isótopos radioativos de inúmeros elementos biologicamente importantes. O uso destes radiotraçadores produzidos artificialmente continuou, com Hamilton e Stone¹ usando sódio radioativo em 1937. Hertz, Roberts e Evans¹ em 1938, usaram iodo radioativo no estudo da fisiologia da tireoide, seguidos em 1939 por J. H. Lawrence, Scott e Tuttle¹ que fizeram estudos sobre a leucemia empregando fósforo radioativo. Em 1940, Hamilton e Soley¹ realizaram estudos do

metabolismo do iodo pela glândula tireoide *in situ* usando iodo radioativo em indivíduos normais e em pacientes com vários tipos de bócio.

O primeiro ciclotron médico foi instalado em 1941 na Universidade de Washington, em St. Louis, onde isótopos radioativos de fósforo, ferro, arsênio e enxofre foram produzidos¹. Com o desenvolvimento dos processos de fissão, durante a Segunda Guerra Mundial, a maior parte dos radioisótopos de interesse médico começaram a ser produzidos em reatores nucleares. Após a guerra, o amplo uso de materiais radioativos na medicina estabeleceu um novo campo que inicialmente foi chamado de Medicina Atômica e, posteriormente, se tornou o que hoje é conhecido como Medicina Nuclear. Carbono radioativo, trítio, iodo, ferro e cromo começaram nesta época a serem usados mais amplamente no estudo de várias doenças.

Cassen e colaboradores², em 1951, desenvolveram o conceito de “scanner” retilíneo, o qual abriu caminho para obtenção em curto intervalo de tempo a distribuição espacial de radioatividade em torno de uma dada amostra, órgão ou tecido radioativo. Estes estudos levaram ao desenvolvimento da primeira “gama câmera” por Anger³ em 1958. O projeto original foi modificado no final da década de 1950 no que hoje é conhecida como “câmera de cintilação de Anger”, inaugurando a era moderna de “gama câmeras”, cujos princípios estão em uso até os dias de hoje.

O Gerador de Tecnécio ($^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$) foi desenvolvido pelo “Brookhaven National Laboratory (BNL)” em 1957⁴. O $^{99\text{m}}\text{Tc}$, produzido via este sistema gerador tem sido o radioisótopo mais empregado na medicina nuclear até os dias atuais, responsável por cerca de 85% de todos os procedimentos de diagnósticos efetuados.

A era moderna da medicina nuclear tem sido chamada de medicina molecular, pois atualmente é possível associar os avanços da biologia molecular e da bioquímica para compreender a fisiologia humana, e daí para tratamentos clínicos, assim como diagnósticos de várias patologias e alterações anatômicas. O advento da tomografia PET para diagnóstico de neoplasias fazendo uso de diversos marcadores sofisticados tem contribuído para desvendar a biologia por trás do câncer.

1.7. RADIOISÓTOPOS PARA IMAGENS

As imagens obtidas pela medicina nuclear moderna diferem de outras imagens radiológicas pelo fato dos radiotraçadores usados fornecerem um mapa de funcionamento de um sistema orgânico ou caminho metabólico e, então, as imagens das concentrações destes agentes no corpo podem revelar a integridade destes sistemas ou caminhos. Esta é a base para as informações exclusivas que a medicina nuclear fornece com as imagens digitais obtidas dos vários órgãos e sistemas funcionais do corpo humano. Alguns destes procedimentos estão descritos na tabela 1.4.

Embora exista uma grande variedade de outros radioisótopos que também são utilizados na obtenção de imagens, o número destes que são usados nos estudos por imagens SPECT ou PET é relativamente pequeno, como pode ser visto nos dados apresentados na tabela 1.4.

A tabela 1.5 fornece algumas rotas de produção de vários radioisótopos de meia-vida curta, para energias relativamente baixas, menores que 40 MeV. O ^{99m}Tc está incluído pois este isótopo sozinho é responsável por aproximadamente 85% de todos os diagnósticos médicos efetuados em todo o mundo, e há uma série de propostas que sugerem ser possível a produção deste importante radioisótopo em aceleradores. Por outro lado, os custos de produção do ^{99m}Tc em um acelerador nunca poderão competir com o custo extremamente baixo de produzi-lo em reatores nucleares, embora haja dúvidas quanto a capacidade mundial de construção de novos reatores, comprometendo assim a disponibilidade deste importante radioisótopo. Na verdade, a disponibilidade mundial do ^{99m}Tc já está severamente comprometida desde meados de 2009 quando o Canadá deixou de fornecer este isótopo, sem previsão de retorno a curto prazo.

Tabela 14 - Radioisótopos e aplicações na obtenção de imagens¹.

Radioisótopo	Meia-vida	Aplicação	Método
^{99m} Tc	6h derivado do ⁹⁹ Mo	Usado para imagens do esqueleto e músculo cardíaco, mas também usado para obtenção de imagens do cérebro, tireoide, pulmão (perfusão e ventilação), fígado, baço, rins (estrutura e taxa de filtração), bexiga, medula óssea, glândulas salivares e lacrimais, acúmulo de sangue no coração e inúmeros estudos médicos especializados.	SPECT
⁵⁷ Co	272 d	Usado como marcador para estimar o tamanho de órgãos e para diagnósticos <i>in vitro</i> .	
⁶⁷ Ga	78 h	Usado para imagens de tumores e localização de lesões inflamatórias (infecções)	SPECT
¹¹¹ In	67 h	Usado em estudos especializados de diagnóstico, por exemplo, para o cérebro, infecções e trânsito do cólon.	
¹²³ I	13 h	Cada vez mais utilizado para o diagnóstico da função tireoidiana, é um emissor gama sem a radiação beta do ¹³¹ I.	SPECT
^{81m} Kr	13 s derivado do ⁸¹ Rb (4.6 h)	Pode produzir imagens funcionais da ventilação pulmonar, pois trata-se de um gás, em pacientes com asma e também para o diagnóstico precoce de doenças do pulmão.	
⁸² Rb	65 h	Conveniente para imagens de perfusão do miocárdio.	PET
⁹² Sr	25 d	Usado como gerador para produzir ⁸² Rb.	
²⁰¹ Tl	73 h	Usado para diagnóstico de doenças coronarianas e outras doenças cardíacas, como a morte do músculo cardíaco e localização de linfomas de baixo grau.	SPECT
¹¹ C ¹³ N ¹⁵ O ¹⁸ F	20.4 min 9.97 min 2 min 110 min	Emissores de pósitrons usados para o estudo da fisiologia e patologia cerebrais, em particular para a localização de focos de epilepsia, e estudos neurofarmacológicos. Possuem significativa aplicação na cardiologia. A molécula de deoxiglicose marcada com ¹⁸ F (FDG) tem sido muito importante na detecção do câncer e na monitoração dos progressos de tratamentos.	PET

O ¹²³I tem sido objeto de interesse nas últimas três décadas devido à sua química única que torna este isótopo possível de associar a uma grande variedade de moléculas, além dos 159 keV de energia de seus fótons- γ , o que os torna muito bem adaptados às câmeras SPECT.

A capacidade de produzir ¹²³I de alta pureza a partir de alvos de ¹²⁴Xe enriquecido permitiu a entrega deste radioisótopo até longas distâncias e ainda com alta AE, necessária para marcação de moléculas. No entanto, os custos de produção ainda são

muito altos em comparação com os custos de outros radioisótopos, o que ainda tem limitado seu uso em maior escala. Enquanto o ^{123}I pode ser produzido para uso local por meio das reações $^{123}\text{Te}(\text{p},\text{n})$ ou $^{124}\text{Te}(\text{p},2\text{n})$, a co-produção de $^{124,125}\text{I}$ limita o tempo de estocagem deste elemento, via estas duas rotas de produção.

Tabela 1.5 - Reações nucleares empregadas na produção dos radioisótopos mais comumente usados para produção de imagens¹.

radioisótopo	Meia-vida	Reação	Energia (MeV)
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6.0 h	$^{100}\text{Mo}(\text{p},2\text{n})$	30
		$^{124}\text{Xe}(\text{p},2\text{n})^{123}\text{Cs}$	27
		$^{124}\text{Xe}(\text{p},\text{pn})^{123}\text{Xe}$	27
^{123}I	13.1 h	$^{124}\text{Xe}(\text{p},2\text{pn})^{123}\text{I}$	27
		$^{123}\text{Te}(\text{p},\text{n})^{123}\text{I}$	15
		$^{124}\text{Te}(\text{p},2\text{n})^{123}\text{I}$	25
^{201}Tl	73.1 h	$^{203}\text{Tl}(\text{p},3\text{n})^{201}\text{Pb}$	29
^{11}C	20.3 min.	$^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)$	11 – 19
		$^{11}\text{B}(\text{p},\text{n})$	10
^{18}F	110 min.	$^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})$	15
		$^{20}\text{Ne}(\text{d},\alpha)$	14
		$^{\text{nat}}\text{Ne}(\text{p},\text{x})$	40
^{64}Cu	12.7 h	$^{64}\text{Ni}(\text{p},\text{n})$	15
		$^{68}\text{Zn}(\text{p},\alpha\text{n})$	30
		$^{\text{nat}}\text{Zn}(\text{d},\alpha\text{xn})$	19
		$^{\text{nat}}\text{Zn}(\text{d},2\text{pxn})$	19
^{124}I	4.14 d	$^{124}\text{Te}(\text{p},\text{n})$	13
		$^{125}\text{Te}(\text{p},2\text{n})$	25

O ^{201}Tl foi desenvolvido no *Brookhaven National Laboratory*, onde foi demonstrado que ele poderia ser usado como traçador ideal na detecção de perfusão do miocárdio⁵. A molécula de cloreto de tálio marcada com ^{201}Tl tem sido extensivamente usada por mais de 25 anos e permanece sendo o padrão para medidas do fluxo sanguíneo no coração. Durante este período, foram feitos inúmeros relatos de seu fim devido à grande disponibilidade do $^{99\text{m}}\text{Tc}$, porém, devido aos recentes problemas de fornecimento deste último, a demanda pelo ^{201}Tl tem crescido de forma substancial.

O restante dos isótopos listados são usados para obtenção de imagens PET. O ^{11}C é extremamente atrativo porque, em princípio, qualquer átomo de carbono existente em uma molécula de interesse pode ser substituído por seu isótopo radioativo. Entretanto, devido a sua curta meia-vida, sua disponibilidade estará limitada apenas nos locais onde exista um acelerador ou que estejam nas proximidades de um. Já a demanda pelo ^{18}F tem excedido sua disponibilidade. Para superar essa carência, um número relativamente grande de centros de distribuição foram montados em grandes áreas metropolitanas da América do Norte, Ásia e Europa. Embora existam várias outras rotas possíveis para produção do ^{18}F , a reação (p,n) é mais indicada para produções em grandes quantidades. Caso a disponibilidade de ^{18}F continue a crescer nas taxas atuais de 10 a 20% anuais, as moléculas marcadas com este isótopo começarão a competir com outras substâncias usadas em tomografias SPECT, como o ^{123}I . Esta disponibilidade virá do fato da quebra do monopólio estatal e da instalação de centros de produção na iniciativa privada, conforme citado anteriormente.

Dois outros isótopos, ^{124}I e ^{64}Cu , são fortes candidatos tanto para tomografias PET como para radioterapia. O interesse nestes dois está relacionada primeiramente às suas meias-vidas relativamente longas. Tais propriedades permitirão estudos onde a cinética é lenta, ultrapassando até a capacidade de processamento de imagens oferecida pelo ^{18}F .

As desvantagens incluem a baixa taxa de produção, no caso do ^{124}I e a necessidade de materiais enriquecidos (^{64}Ni e ^{124}Te), que são muito caros. Resultados apresentados por pesquisadores da *Washington University* em *Saint Louis*, mostram que imagens PET de alta resolução são possíveis com partículas β^+ de alta energia associadas ao decaimento do ^{124}I , e outros fótons em coincidência com o decaimento β^+ presente no ^{64}Cu ^{6,7}.

1.8. TERAPIAS COM RADIOISÓTOPOS

A ideia do uso de radioisótopos em terapias é baseada no desejo de uma

ligação entre radioisótopos que emitam partículas com elevada capacidade de transferir toda sua energia cinética em uma curta distância, o que é chamado de “Transferência Linear de Energia” (TLE), como elétrons Auger, partículas β^- ou partículas α , e uma molécula que seja biologicamente ativa que possa ser facilmente direcionada ao local do tumor. Visto que os radioisótopos beta emissores são ricos em nêutrons, em geral tem que ser produzidos em reatores nucleares. A tabela 1.6 lista alguns dos radioisótopos propostos como possíveis marcadores radioterápicos, e a tabela 1.7 lista as reações nucleares com partículas carregadas que podem ser usadas para produções de substâncias potencialmente radioterápicas.

Tabela 1.6 - Possíveis isótopos radioterápicos para uso no tratamento de câncer¹.

⁴⁷ Sc	⁶⁴ Cu	⁶⁷ Cu	⁷⁷ Br	⁹⁰ Y
¹⁰⁵ Rh	¹⁰³ Pd	¹¹¹ Ag	¹²⁴ I	¹⁴² Pr
¹⁴⁹ Pm	¹⁵³ Sm	¹⁵⁹ Gd	¹⁶⁶ Ho	¹⁷⁷ Lu
^{186,188} Re	¹⁹⁴ Ir	¹⁹⁹ Pt	²¹¹ At	²¹³ Bi

A maioria destes radioisótopos são produzidos em reatores nucleares, embora alguns sejam melhor produzidos através de reações nucleares com partículas carregadas em aceleradores de partículas. A característica positiva do ⁷⁷Br é a sua versatilidade aliada com sua meia-vida. A taxa de produção é relativamente baixa, e a pureza pode ser um problema visto que o ⁷⁶Br é muitas vezes produzido junto. A demanda pelo ¹⁰³Pd, usado em braquiterapia da próstata, continua a crescer. Um grande número de aceleradores ciclotrons de baixa energia (18 MeV) tem sido comprados e instalados, dedicados exclusivamente à produção deste isótopo.

O ¹⁸⁶Re é importante por inúmeras razões. Além das características de decaimento, o rênio está na mesma família do tecnécio. Assim, muito do conhecimento e da química desenvolvidos para o tecnécio podem ser aplicados ao rênio.

As taxas de produção para todas as reações de produção do ¹⁸⁶Re listadas na tabela 1.7 são muito baixas. Assim, a única via prática para produção deste isótopo potencialmente importante é através da captura de nêutrons em um reator nuclear. Isso

resulta em uma rota de baixa AE, limitando drasticamente sua utilidade.

Tabela 1.7 - Rotas de produção e modos de decaimento de isótopos radioterápicos produzidos por reações nucleares com partículas carregadas¹.

radioisótopo	Meia-vida	Decaimento	Reação	Energia (MeV)
⁷⁷ Br	2,4 d	Elétrons Auger	⁷⁵ As(α ,2n)	27
			⁷⁷ Se(p,n)	13
			⁷⁸ Se(p,2n)	24
			^{79,81} Br(p,xn) ⁷⁷ Kr	45
			^{nat} Mo(p,desbaste)	> 200
¹⁰³ Pd	17,5 d	Elétrons Auger	¹⁰³ Rh(p,n)	19
			^{nat} Ag(p,xn)	> 70
			¹⁸⁶ W(p,n)	18
¹⁸⁶ Re	90,6 h	β^-	¹⁸⁶ W(d,2n)	20
			¹⁹⁷ Au(p,desbaste)	> 200
			^{nat} Au(p,desbaste)	> 200
			^{nat} Ir(p,desbaste)	> 200
²¹¹ At	7,2 h	a	²⁰⁹ Bi(α ,2n)	28
			²⁰⁹ Bi(⁷ Li,5n) ²¹¹ Rn	60
			²³² Th(p,desbaste) ²¹¹ Rn	> 200

Finalmente, os isótopos emissores de partículas α tem sido de interesse para uso em terapias devido aos elevados valores de sua TLE. O ²¹¹At é de interesse porque possui muitas das propriedades dos halógenos e cada decaimento resulta em uma partícula- α . Devido à sua meia-vida curta (7,2 h), muitos locais para sua produção seriam necessários para cobrir todas as aplicações práticas. Por isto, a produção de seu radioisótopo pai (²¹¹Rn, $t_{1/2}$ =14,6 h) é sugerida como forma de produção do ²¹¹At e transporte para localidades remotas.

1.9. RADIOFÁRMACOS

Os radiofármacos diferem dos fármacos usuais na medida em que são ministrados em concentrações muito baixas, tanto que estas substâncias não suscitam

nenhum tipo de resposta farmacológica do organismo. Já houve no passado uma série de tentativas de mudar o nome dado a estas substâncias, por exemplo radiotraçadores, mas sem sucesso. Os radiofármacos nos dias atuais são utilizados para fins de diagnósticos em cerca de 95% dos procedimentos e para terapias nos restantes 5% ^{8,9}.

Para que uma substância marcada com algum radioisótopo seja chamada de radiofármaco e possa ser usada com segurança em seres humanos, esta deve cumprir uma série de exigências e normas de qualidade que incluem pureza química e radioquímica, esterilidade e ausência de substâncias pirogênicas.

Como em todas as questões relativas à vida, não há um radiofármaco ideal¹⁰. Desta forma, na concepção de um candidato a radiofármaco, três fatores devem sempre ser levados em consideração:

- (a) desenvolver uma substância que se ligue preferencialmente em um local específico;
- (b) determinar a sensibilidade do radiofármaco a alterações bioquímicas;
- (c) encontrar uma ou mais alterações bioquímicas em função de uma doença também específica, que corresponda a sensibilidade do item (b).

1.10. APLICAÇÕES NA INDÚSTRIA

Aplicações de radioisótopos na indústria tem ocorrido de forma a incorporar o isótopo em um dado sistema, ou induzir radioatividade no sistema, por meio de partículas carregas ou ativação por nêutrons. A AIEA tem publicado um guia sobre todos os pedidos de radioisótopos feitos pela indústria em geral, que fornece um excelente panorama das pesquisas recentes com a utilização de radioisótopos em uma variedade muito grande de aplicações¹¹.

1.10.1.PROCESSAMENTO DE MATERIAIS

Radioisótopos são usados para melhorar a qualidade dos materiais de muitas

formas diferentes. Todas as formas de emissão de radiação (α , β , γ e Raios-X) perdem intensidade (energia) à medida que atravessam os meios materiais, e essa perda de energia pode ser usada para determinar muitas das propriedades deste material. A espessura e a densidade de um material podem ser facilmente determinadas pela atenuação da radiação, falhas ou rachaduras podem ser facilmente identificadas por meio de anomalias nesta mesma atenuação. Como exemplo, partículas β de 250 keV de energia média, oriundas do decaimento do ^{85}Kr , podem ser usadas para medidas precisas da espessura de camadas de plástico.

Pequena quantidade de um isótopo radioativo pode ser usada como um marcador para detectar problemas no processamento de vários tipos de materiais. Estes radioisótopos tornam possível verificar a existência de vazamentos em tubulações diversas, monitorar a taxa de desgaste de motores e a corrosão de equipamentos, observar a velocidade de escoamento de materiais ao longo de linhas de produção ou então no interior de tubulações, além de avaliar a eficiência dos sistemas de filtração. Outro exemplo, é o ^{192}Ir , que é usado para testar a integridade de dutos e soldas em peças de navios e aviões.

1.11. INSTRUMENTAÇÃO COM RADIOISÓTOPOS

Instrumentos que contém radioisótopos são amplamente usados porque podem realizar medições sem contato físico direto com o objeto a ser medido. Por exemplo, indicadores de nível podem ser empregados onde há fontes de intenso calor (vidro ou metais fundidos), como é o caso do carregamento dos altos-fornos da Companhia Siderúrgica Paulista (COSIPA), que usa uma combinação de duas fontes radioativas, uma de ^{241}Am e outra que emita raios γ , onde haja altas pressões, e onde existam substâncias corrosivas.

Intensas fontes de ^{192}Ir e ^{60}Co são frequentemente usadas desta forma. Uma série de fontes colimadas em conjunto com detectores posicionados em lados opostos de uma correia transportadora pode fornecer medidas precisas sobre a espessura ou a densidade do material transportado na esteira.

1.12. SERVIÇOS E PRODUTOS DE CONSUMO

Materiais radioativos são essenciais para o fornecimento de algumas necessidades e conveniências, por exemplo:

(a) Muitos detectores de fumaça contém de uma fonte radioativa pequena, em geral de ^{241}Am , para fazer disparar um alarme sonoro quando fumaça está presente no ambiente;

(b) Disco rígidos usados em computadores tem a capacidade de leitura e escrita aumentada quando sua superfície é tratada com radiação;

(c) Superfícies de painéis são tratadas com radiação antes de receberem uma cobertura de material anti-aderente: isto garante que o material fique firmemente preso à sua superfície;

(d) Máquinas fotocopadoras usam pequenas quantidades de material radioativo, para eliminar eletricidade estática impedindo desta forma que as folhas de papel colem na superfície dos cilindros, evitando assim o atolamento da máquina;

(e) Muitos cosméticos, produtos para os cabelos e soluções para lentes de contato são irradiados para remover alérgenos e patógenos;

(f) Bandagens, algodão, luvas e máscaras e instrumental de uso médico, uma grande variedade de produtos de saúde e higiene pessoal são todos esterilizados por meio de exposição à intensas fontes de radiação, em geral de ^{60}Co .

1.13. APLICAÇÕES BIOLÓGICAS E AMBIENTAIS

Os radioisótopos podem ser utilizados no estudo de processos químicos e biológicos tanto em plantas como no meio ambiente em geral. Há duas razões para esta utilidade:

(1) Radioisótopos são quimicamente idênticos quando comparados com outros isótopos do mesmo elemento e reagirá da mesma forma em qualquer processo químico;

(2) Para muitos elementos alguns dos isótopos radioativos possuem meia-vida adequada, podendo ser facilmente detectados no ambiente.

1.14. APLICAÇÕES NA AGRICULTURA

Existem muitas aplicações de radioisótopos na agricultura. Radiação tem sido usada para produzir novas variedades de sementes com maior rendimento, como um tipo de arroz (chamado *miracle*) que tem expandido a produção de arroz principalmente na Ásia.

A radiação ionizante aumenta o número de variedades de plantas e, com uma cuidadosa seleção, leva a culturas que são muito mais resistentes às pragas e à seca, bem como culturas com rendimentos mais elevados ou então com redução considerável nos tempos de crescimento e colheita. Esta tem sido uma prática de várias décadas, o que ajudou a incrementar as produções de alimentos em várias localidades. No Brasil, a EMBRAPA (Empresa Brasileira de Pesquisa Agropecuária) tem levado avante diversos programas de pesquisa e desenvolvimento nesta área.

Radioisótopos são ferramentas ideais para investigação de fertilizantes. Nutrientes importantes, como cálcio, fósforo, ferro, potássio, cobre, sódio, enxofre e zinco, tem isótopos radioativos com tempos adequados de meia-vida e características de decaimento favoráveis, permitindo seu emprego como marcadores. Estes elementos podem ser incorporados aos adubos e aplicados ao solo para determinar os efeitos sobre as plantas ou então resultar em informações sobre métodos de adubação. A absorção do adubo ativado pode ser facilmente medido e pode ainda ser distinguido da captação do mesmo composto que possam já estar presentes no solo. O ^{32}P tem uma ampla aplicação no campo da fisiologia vegetal além da química do solo.

Pesquisas tem sido também realizadas sobre os mecanismos de absorção de nutrientes através da utilização do ^{32}P . Usando arroz como cultura de teste, os estudos estão sendo feitos sobre a absorção e distribuição de fosfatos, carbono e nitrogênio, com auxílio do superfosfato, ureia e sulfato de amônia marcados com ^{32}P , ^{14}C e ^{15}N , que foram aplicados tanto no solo quanto pulverizados sobre as folhas das plantas.

1.14.1. CONTROLE DE INSETOS E PRAGAS

Insetos e pragas destroem cerca de 10% de todas as culturas ao redor do mundo. Liberando na natureza insetos estéreis criados em laboratório, por vezes pode controlar estas pragas. Os insetos machos estéreis são obtidos pela irradiação de insetos sadios com radiação γ proveniente de fontes de ^{60}Co . As fêmeas que acasalam com os machos estéreis não reproduzirão e, como consequência, a população destes insetos pode ser contida. Esta técnica é considerada mais segura e melhor do que os inseticidas químicos convencionais, uma vez que os insetos podem desenvolver resistência aos inseticidas, podendo levar a problemas de saúde pública no entorno das culturas tratadas quimicamente.

1.14.2. FISIOLOGIA VEGETAL

O radioisótopo mais amplamente usado para estudos da cinética em vegetais é o ^{13}N . Apesar de sua meia-vida relativamente curta (< 10 minutos), uma enorme variedade de estudos tem sido levados a cabo para compreender como se dá a incorporação deste importante elemento para o desenvolvimento de praticamente todos os sistemas vegetais. O uso do ^{11}C oferece a oportunidade para a produção de moléculas mais complexas, da mesma forma como já feito nas aplicações médicas.

1.15. RECURSOS HIDRICOS

Água é essencial para a vida. No entanto, em muitas partes do mundo a água é escassa e, em outras partes, inexistente. A hidrologia isotópica usando trítio (ou outro radioisótopo facilmente solúvel), torna possível a rastreabilidade dos recursos hídricos subterrâneos. Essas técnicas são importantes ferramentas de análise para gerenciamento e conservação das fontes de água existentes e na identificação de novas fontes. Os resultados permitem um planejamento e uso sustentável destes recursos hídricos.

Sondas de nêutrons podem medir a umidade do solo com grande precisão, permitindo um melhor gerenciamento das terras afetadas pela salinidade, principalmente no que diz respeito à irrigação.

Para águas superficiais, radiotraçadores podem fornecer informações sobre fuga através de barragens e canais de irrigação, a dinâmica de lagos e reservatórios, medidas de vazão de rios e taxas de sedimentação. Muitos países tem utilizado técnicas de isótopos radioativos na investigação de seus recursos hídricos em colaboração com a AIEA.

1.16. RESUMO

Radioisótopos tem propriedades muito úteis. A radioatividade pode ser facilmente detectada e pode ser rastreada até desaparecer completamente sem deixar vestígios. Estas propriedades conduziram a muitas aplicações práticas dos radioisótopos nos meios científico, médico, forense, industrial, dentre outras. A tabela 1.8 fornece uma lista dos radioisótopos mais importantes, acompanhados de suas variadas aplicações.

Tabela 1.8 - Radioisótopos mais comuns e suas aplicações¹.

Radioisótopo	Aplicação
²⁴¹ Am	Usado em detectores de fumaça em casas e escritórios; para medidas de níveis tóxicos de chumbo em amostras de tinta seca; para garantir espessuras uniformes nas indústrias de aço e papel; auxílio na determinação de locais adequados para perfuração de poços de petróleo.
¹³⁷ Cs	Usado no tratamento de câncer; calibração de equipamentos de radioterapia; medir o fluxo em oleodutos; assegurar o nível correto de preenchimento de embalagens nas indústrias de alimentos e farmacológica.
^{11,14} C	Usado em pesquisas para garantir que novas drogas serão metabolizadas sem a formação de subprodutos nocivos.
⁵¹ Cr	Usado nas pesquisas das células vermelhas do sangue.
⁶⁰ Co	Para esterilizar instrumentos cirúrgicos, melhorar a confiabilidade e segurança e a confiabilidade dos queimadores de óleo combustível industrial; preservar aves, frutas e especiarias.
⁶⁴ Cu	Marcador para circulação sanguínea; estudos da hipóxia celular.
⁶⁷ Cu	Quando ligado a anticorpos monoclonais e injetado em pacientes com câncer, auxilia estes anticorpos a destruir o tumor.
¹⁸ F	Usado em moléculas marcadas como a FDG para detecção de neoplasias; também usado para acompanhar resultados de tratamentos radioterápicos ou quimioterápicos; estudos do metabolismo da glicose no cérebro e em outros órgãos vitais.
⁶⁷ Ga	Citrato de gálio é muito útil na detecção de vários tipos de tumores malignos, principalmente em tecidos moles da região abdominal.
¹²³ I	Largamente usado para diagnósticos de distúrbios da tireoide
¹²⁴ I	Usado em tomografia PET para diagnósticos de distúrbios da tireoide, da mesma forma que o ¹²³ I é usado em tomografia SPECT.
¹³¹ I	Usado no tratamento dos distúrbios da tireoide
¹³ N	Na forma de amônia (¹³ NH ₃) usado para imagens do coração.
³² P	Usado em biologia molecular e pesquisas genéticas.
⁸² Rb	Usado como marcador para o fluxo sanguíneo.
⁸⁵ Sr	Usado em estudos da formação óssea e do metabolismo.

Tabela 1.8 - Radioisótopos mais comuns e suas aplicações (continuação).

Radioisótopo	Aplicação
^{99m}Tc	Mais utilizado em diagnósticos médicos para obtenção de imagens do cérebro, ossos, fígado, baço e rins, e estudos do fluxo sanguíneo.
^{201}Tl	Usado em testes de estresse cardíaco; estudos de perfusão do miocárdio; substitui o ^{99m}Tc para imagens do coração.
^{103}Pd e ^{125}I	Braquiterapia da próstata.
^{57}Co	Fontes para calibração de medidores e detectores de radiação.
^{111}In	Marcação de células vermelhas do sangue.

2. ACELERADORES DE PARTÍCULAS

2.1. INTRODUÇÃO

A produção de radionuclídeos com aceleradores exige que o feixe de partículas tenha duas características específicas. A energia do feixe deve ser suficiente para provocar as reações nucleares de interesse, e deve haver corrente de feixe com intensidade suficiente para fornecer rendimentos práticos. Este capítulo descreve os vários tipos de aceleradores, suas características básicas de operação em relação à produção de radioisótopos.

A transmutação nuclear, ou a transformação de um elemento químico em outro, radioativo ou não, foi demonstrada pela primeira vez pelo físico neozelandês Ernest Rutherford¹² (1871 - 1937) em 1919, quando era diretor do *Cavendish Laboratory*, em Cambridge, Reino Unido. Em seus experimentos, Rutherford dirigiu partículas α provenientes de uma amostra de polônio para o interior de uma ampola contendo nitrogênio gasoso, provocando a emissão de prótons que foram detectados. No início da década de 1930, a produção de isótopos radioativos sofre uma reviravolta, com a construção do primeiro acelerador ciclotron na *University of California, Berkeley* por E. O. Lawrence, M. S. Livingston e N. E. Edlfsen^{13,14}. Com o ciclotron, foi possível produzir pela primeira vez uma variedade muito grande de isótopos radioativos.

Pesquisadores de todo o mundo se dirigiram a Berkeley, CA, para usar os radionuclídeos produzidos artificialmente, como o sódio e o iodo radioativos. No final da mesma década radionuclídeos produzidos em ciclotrons já eram usados em pesquisas biomédicas, clínicas e bioquímicas. Em 1936 a *University of California* cria oficialmente o *Radiation Laboratory* como uma entidade independente do seu Departamento de Física. Posteriormente este laboratório foi reorganizado para se dedicar às pesquisas em Ciências Nucleares em geral. Um centro de medicina nuclear já existia no hospital universitário da *University of California* em San Francisco, onde Hamilton e Stone operavam a fonte de

Raios-X desenvolvido anos antes por Sloan. Hamilton e Stone se uniram a John Lawrence (irmão de Ernest) que tinha grande interesse nos efeitos biológicos de nêutrons durante sua visita a Berkeley no verão de 1935. Recursos financeiros para construção de ciclotrons maiores foram conseguidos por E. Lawrence em 1936 em razão de sua grande utilidade na medicina¹⁵.

Mesmo com este cenário favorável, nos primeiros anos, os ciclotrons foram usados principalmente para pesquisas na área de Física Básica. Radioisótopos para aplicações médicas ficavam em segundo plano. O primeiro acelerador ciclotron dedicado a aplicações médicas foi instalado na *Washington University, Saint Louis*, em 1941, quando isótopos radioativos de fósforo, ferro, arsênio e enxofre foram produzidos. Durante a Segunda Guerra Mundial, radioisótopos para aplicações médicas eram todos produzidos em um ciclotron instalado em Boston. Em meados da década de 1950, um grupo de pesquisadores do *Hammersmith Hospital*, em Londres, colocou em operação um acelerador ciclotron totalmente dedicado à produção de radionuclídeos para aplicações médicas. A mudança mais marcante, porém, ocorreu no início da década de 1960 quando trabalhos de química e nucleogenia em alvos bombardeados lançou as bases para a síntese de compostos orgânicos marcados com átomos emissores de pósitrons, estava inaugurada a era da medicina molecular. Um artigo publicado por Ter-Pogossian e Wagner¹⁵ em 1966 é focado no uso do ^{11}C . Como o campo da medicina nuclear progredia de forma quase que exponencial, principalmente nos Estados Unidos, o número de tipos disponíveis de aceleradores de partículas, com diferentes características, dedicados à produção de radioisótopos, cresceu de forma proporcional. As principais classes de aceleradores são os ciclotrons de íons positivos e negativos. Inovações recentes incluem ciclotrons com ímãs supercondutores, aceleradores lineares de baixa energia, aceleradores por queda de potencial eletrostático (Van de Graaff e Tandem Van de Graaff) e LINAC's que aceleram apenas núcleos de hélio. Entretanto, estes últimos não ganharam ampla aceitação, principalmente como resultado da completa falta de experiência em aplicações de produção de radioisótopos. Aceleradores Van de Graaff tradicionais ainda tem sido usados para produções rotineiras de alguns radionuclídeos, mas provavelmente este tipo de acelerador não deverá ser levado em consideração para futuras instalações.

Wolf e Jones^{16,17,18} analisaram as aplicações de aceleradores ciclotrons para produções de radionuclídeos e sugeriram que estes aceleradores fossem classificados em quatro categorias, de acordo com o tipo de partícula acelerada e energia destas partículas. Estas categorias encontram-se listadas na tabela 2.1.

Tabela 2.1 - Classificação de aceleradores ciclotrons

Classificação	Características	Energia (MeV)	Comentários
Nível I	Partícula única, p ou d. (algumas vezes as duas)	10	
Nível II	Única ou múltiplas partículas, p, d.	20	³ He, ⁴ He usualmente não disponíveis.
Nível III	Única ou múltiplas partículas, p, d.	50	³ He, ⁴ He podem estar disponíveis.
Nível IV	Usualmente apenas p.	70 – 500	

Nota: p se refere a prótons e d se refere a dêuterons.

Cada classe de acelerador apresentada aqui será descrita a seguir, bem como as considerações pertinentes na escolha de um acelerador, além de sua instalação em um local operacional típico.

2.2. O ACELERADOR LINEAR

O conceito do LINAC, contração de *linear Accelerator* surgiu devido ao limite máximo de energia que podia ser fornecida a uma partícula acelerada entre dois eletrodos, como era o caso dos aceleradores de Van de Graaff e Cockroft-Walton. Não há como isolar perfeitamente dois eletrodos, sempre haverá uma descarga para a terra. Para suplantar esta limitação, Wideröe, um físico alemão, concebeu em 1930 um sistema que permitiria acelerar partículas em pequenos passos que, somados, resultariam em partículas com energias nunca antes imaginadas.

2.2.1. PRINCÍPIOS FÍSICOS DO LINAC

O princípio de aceleração usado em todos os aceleradores está no fato de que uma partícula carregada tem sua energia variada quando atua sobre ela um campo elétrico. No LINAC, esta variação de energia é aplicada por um potencial alternado, que deve ser aplicado exatamente na sequência adequada para manter a aceleração das partículas. Na prática, isto é conseguido com o uso de um conjunto de eletrodos ocos, em geral de formato cilíndrico, chamados de cavidades de aceleração, os quais permitem que as partículas atravessem seu interior com velocidade constante e sejam aceleradas no espaçamento entre dois eletrodos consecutivos. A partícula é acelerada para dentro do eletrodo seguinte por um campo elétrico de sinal oposto ao sinal da partícula acelerada. À medida que a partícula atravessa a cavidade de aceleração, a fase do campo elétrico gira de 180° e, na saída do tubo, a partícula é acelerada agora com um impulso dado por um campo elétrico de mesmo sinal da partícula, ou seja, as partículas são aceleradas por uma sucessão de repulsões e atrações elétricas provocadas por um campo elétrico alternado. A frequência deste campo elétrico deve ser ajustada de forma a sempre estar em fase ou contra-fase com o sinal da partícula. Por outro lado, como a velocidade das partículas está aumentando em cada passagem pelos eletrodos, estes devem ter comprimentos crescentes para compensar os tempos de passagem cada vez menores em seu interior, visto que o tempo (período) para que o campo elétrico mude de fase é constante, mostrado esquematicamente na figura 2.1.

Uma técnica que auxilia manter o tempo de aceleração está relacionada com a estabilidade de fase. O potencial elétrico em cada estágio de aceleração deve ser ajustado de forma que o máximo é aplicado após a passagem das partículas por um determinado ponto do espaço.

Isto permite uma certa margem de tolerância nos tempos de voo das partículas. Se as partículas se movem muito rapidamente e chegam muito cedo ao ponto de aceleração, elas encontram o potencial aplicado ligeiramente menor que o ideal e as partículas atravessam a próxima seção de forma um pouco mais lenta e estarão em fase com o potencial quando emergirem no outro extremo da seção. Se as partículas estão se movendo muito lentamente e chegam um pouco tarde à região de aceleração, a fase do

campo elétrico pode dar-lhes um impulso extra e, novamente, as partículas passam para a próxima seção de aceleração em fase com o campo elétrico. O resultado desta técnica é que as partículas são aceleradas em “pacotes” (“*bunches*”), não na forma de um feixe contínuo, porque o efeito líquido é o de atrasar as partículas adiantadas e adiantar aquelas que estão atrasadas, de forma a formarem vários “amontoados” destas partículas, um seguido de outro, no interior das cavidades de aceleração. Por outro lado, este efeito pode ter consequências indesejáveis do ponto de vista de engenharia de alvos, pois a potência térmica instantânea depositada sobre a superfície do alvo pode ser muito elevada.

Figura 2.1. Simplificação de um Acelerador Linear (LINAC) típico.

2.2.2. ACELERAÇÃO POR RADIOFREQUÊNCIA

Os LINAC's projetados atualmente para uso médico são acompanhados por fontes de radiofrequência que operam em altas frequências (200 – 500 MHz), o que permite diminuir o comprimento total do acelerador. Em geral, a energia necessária ao sistema de RF é fornecida por um banco de válvulas inseridas em uma cavidade coaxial. O emprego de altas frequências permite o uso de seções mais curtas para as cavidades de aceleração, e este é um importante fator, uma vez que as partículas devem atravessar o comprimento de cada uma destas seções em um ciclo de RF. Isto implica que o comprimento de um dado tubo de deriva deve ser:

$$l = \beta \lambda \quad (2.1)$$

Onde l é o comprimento do tubo; $\beta=v/c$ é a fração da velocidade da luz da partícula; e λ é o comprimento de onda da RF.

Com a finalidade de construir um acelerador linear que forneça partículas com energia razoável e que tenha um tamanho também razoável, fontes de alta frequência são necessárias, e estas fontes só se tornaram disponíveis muito recentemente.

2.2.3. ESTRUTURA DE UM LINAC

O desenho de um típico LINAC incorpora quatro seções distintas, como mostrado na figura 2.2. A primeira seção é a fonte de íons que produz feixes de prótons pulsantes com um sistema de eletrodo único, tipicamente 30 kV. Na segunda parte (o “buncher”), o feixe é “empacotado” e em seguida injetado na terceira seção, que é um sistema quadrupolar de radiofrequência. A energia dos prótons ao final desta seção é da ordem de 2 MeV. O feixe é então transportado para a quarta e última seção, onde a fase do feixe é casada com a fase da cavidade de aceleração do acelerador, e onde os prótons são acelerados até sua energia final de 11 MeV.

2.2.4. ALTO VÁCUO

Em todo acelerador de partículas o vácuo deve ser o melhor possível, para que as partículas tenham um caminho livre médio grande o suficiente para passar de uma cavidade para outra sem sofrerem um espalhamento considerável. Na maioria dos casos práticos isto é feito por bombas de vácuo turbomoleculares, bombas criogênicas ou até mesmo por bombas difusoras a óleo, sendo que as últimas não são muito indicadas porque podem “sujar” o vácuo com vapor de óleo. As bombas dos tipos criogênicas e difusoras necessitam do apoio de bombas mecânicas para alcançarem um pré-vácuo adequado antes de entrarem em operação, como tem sido o caso da maioria dos ciclotrons comerciais atualmente em operação no mundo todo. Nos LINAC's, este vácuo deve ser mantido em níveis melhores do 10^{-6} mm de Hg.

Figura 2.2. Estrutura interna de um LINAC moderno para produção de radionuclídeos.

2.2.5. QUADRUPOLO DE RADIOFREQUÊNCIA

Desenvolvido inicialmente na extinta União Soviética, foi pela primeira vez aplicado em situações práticas nos Estados Unidos da América. O conceito consiste em usar um cavidade de aceleração feito de palhetas dispostas a 90° em entre si e em relação ao caminho do feixe, ao contrário de usar um tubo oco. Estas palhetas são carregadas pelo campo de RF e realizam a mesma função das cavidades de aceleração dos aceleradores tradicionais. A figura 2.3 mostra uma imagem de um sistema quadrupolar de RF.

2.2.6. O LINAC NA ATUALIDADE

Na década de 1980, o Departamento de Defesa dos Estados Unidos apoiou o desenvolvimento de novos aceleradores para aplicações no programa “Guerra nas Estrelas”. Foram três os projetos financiados, todos de concepção linear¹⁹. O objetivo era fazer uso desta tecnologia para produzir um feixe de partículas de densidade elevada (grande massa) e baixa energia cinética. Estes aceleradores vieram cobrir uma lacuna, nos casos onde a seção de choque de interação nuclear necessitavam de baixas energias (< 10 MeV), e com feixes de alta intensidade de corrente ($100 - 1000 \mu A$).

Figura 2.3. cavidade de aceleração típico de um LINAC e Quadrupolo de RF: (a) interior do cavidade de aceleração; (b) interior do quadrupolo de RF.

Enquanto a tecnologia de aceleradores avançava para alcançar estes níveis de corrente de feixe, a tecnologia de alvos ainda não havia sido testada sob estas condições severas. A *Science Applications International Corporation*, San Diego, California, tem como meta a construção de um acelerador linear capaz de acelerar $^3\text{H}^{e2+}$ até 8 MeV de energia. A *AccSys Technology Inc.*, Pleasanton, California, propôs um LINAC, também com tecnologia quadrupolar de RF, mas acelerando apenas prótons. Uma variedade de energias pode ser alcançada variando o comprimento do acelerador (adicionando cavidades de aceleração). *Science Research Laboratory Inc.*, Somerville, Massachusetts, propôs um Acelerador Tandem em Cascata (*Tandem Cascade Accelerator* - TCA) de 4 MeV de energia, capaz de acelerar dêuterons para produções de ^{15}O e ^{13}N , tanto quanto prótons para produções de ^{18}F .

O TCA é um acelerador eletrostático que inicialmente acelera íons negativos (H^-) que passam através de uma folha de carbono (“stripper”) sendo convertidos em íons positivos (H^+), dobrando a energia possível para uma mesma queda de potencial. Ao mesmo tempo, a “*Ion Beam Applications*”, Louvain-la-Neuve, Bélgica, construiu um ciclotron de 3 MeV de energia para D^+ dedicado a produções de ^{15}O . Vários destes pequenos ciclotrons tem sido instalados em clínicas e hospitais por toda a Europa. Das máquinas do projeto “Guerra nas Estrelas”, apenas o TCA foi construído, instalado e colocado em operações rotineiras produzindo radioisótopos para tomografia PET.

2.3. DESENVOLVIMENTO DE CICLOTRONS

O primeiro ciclotron foi construído em 1932 por E. Lawrence baseado nas anotações deixadas por Livingston. Lawrence não entendia alemão, mas conseguiu entender as ideias de Livingston apenas observando os desenhos feitos por este em seu diário.

Infelizmente, a literatura sobre ciclotrons para fins médicos é muito escassa, se não inexistente. O livro de Livingood publicado em 1961²⁰, juntamente com uma recente revisão²¹ são textos sobre aceleradores de partículas em geral dedicando poucas páginas em particular para os ciclotrons. Informações com maiores detalhes sobre os avanços alcançados com ciclotrons e outros aceleradores são encontrados apenas em anais de congressos e simpósios^{22,23}.

2.3.1. PRINCÍPIOS FÍSICOS DO CICLOTRON

De acordo com a teoria da eletrodinâmica, a velocidade angular de uma partícula carregada que atravessa uma região de campo magnético constante e uniforme, é independente do raio da órbita. A energia da partícula cresce à medida que sua velocidade também cresce. O ciclotron utiliza este fato para produzir partículas com energia razoavelmente elevada em um espaço relativamente pequeno. A câmara de aceleração de um ciclotron é colocada entre os polos de um potente eletroímã capaz de produzir um campo magnético intenso, constante e com boa uniformidade, como mostrado na figura 2.4.

O campo magnético faz com que as partículas viagem em órbitas circulares. Estas partículas, os íons, são produzidos na região central da máquina (em alguns casos são produzidas fora e depois inseridas na região central) e são então aceleradas para fora do centro. Os íons são acelerados por um intenso campo elétrico de rádio frequência através de dois ou mais eletrodos ocas chamados “Dês”, devido ao formato geométrico destes eletrodos no primeiro ciclotron construído por Lawrence. Os íons são acelerados e passam

de um “Dê” para o próximo através da região que os separa. Visto que a velocidade angular das partículas permanece constante quando a energia cinética aumenta, o raio de cada órbita aumenta até que as partículas possam ser extraídas do interior da máquina e direcionadas para um alvo. O limite na energia é determinado na prática pelo diâmetro das faces dos polos magnéticos. Alguns ciclotrons de alta energia, muito grandes foram construídos, mas, na maioria dos casos a energia dos prótons acelerados não foi maior do que 70 MeV.

Figura 2.4. Estrutura básica de um ciclotron mostrando os Dês, a fonte de íons interna e as regiões de montes e vales do campo magnético.

2.3.2. ACELERAÇÃO POR RADIOFREQUÊNCIA

Tanto os modos fundamentais de oscilação quanto os harmônicos de ordens superiores podem ser utilizados para aceleração de partículas carregadas em um acelerador ciclotron. A máxima energia desejada para a partícula e o harmônico empregado irão determinar a geometria exata a ser empregada nos eletrodos (Dês), como mostrado na figura 2.5.

Quando o campo de RF é acoplado aos Dês, gradientes de campo elétrico são produzidos. Em cada par, um dos Dês está aterrado enquanto o outro está em um potencial elevado. Sabendo que as partículas carregadas só sentirão os efeitos deste campo

elétrico quando saem ou entram em um Dê, o número de intervalos entre dois Dês consecutivos, por revolução, é igual a duas vezes o número de Dês. O ganho de energia de uma partícula que atravessa um intervalo de aceleração entre dois dês depende da carga da partícula, da intensidade da diferença de potencial elétrico entre os Dês, da relação de fase entre o movimento da partícula e o campo elétrico, e da distância percorrida pela partícula entre os eletrodos.

Figura 2.5. Interior de um ciclotron, mostrando os Dês (A); cobertura inferior dos Dês (B); bobinas circulares (harmônicas) (C) e transição entre monte e vale(D).

As partículas devem cruzar a região entre os eletrodos em um dado intervalo de tempo ou não serão aceleradas. Para um sistema de dois Dês operando na frequência fundamental, o intervalo de tempo é dado pela seguinte relação:

$$1/\omega = r/v \quad (2.2)$$

onde ω é a frequência angular; r é o raio da órbita no plano médio; e v é a velocidade tangencial da partícula.

2.3.3. CAMPO MAGNÉTICO PARA ÓRBITA CIRCULAR

O raio da órbita de uma partícula em um campo magnético é dado pela seguinte relação:

$$r = p/q B_z(r) \quad (2.3)$$

onde r é o raio da órbita; p é o *momentum* da partícula; q é a carga da partícula; e $B_z(r)$ é a indução magnética no plano médio no raio r .

Esta é a órbita de equilíbrio estável, e usualmente as partículas oscilam em torno desta órbita. As equações (2.2) e (2.3) são as equações fundamentais para construção de ciclotrons. Embora, em teoria, a frequência da órbita seja uma constante, na prática isto não é bem verdade. A frequência da órbita diminui com o raio, como resultado do aumento relativístico da massa das partículas, diminuindo ao mesmo tempo a intensidade do campo magnético percebido pelas partículas. Uma partícula em fase com o campo de aceleração no centro do ciclotron, progressivamente ficará fora de fase à medida que sua velocidade vai crescendo, com isto, este tipo de ciclotron tem energia limitada a no máximo 20 MeV.

Este problema pode ser resolvido por meio de ciclotrons de campos magnéticos azimutalmente variáveis (*Azimuthally Varying Field* – AVF) que aplicam o princípio de focalização por gradientes alternados de campo. Gradientes alternados são produzidos fazendo aberturas entre os polos dos magnetos alternadamente, rasas e fundas, que são as chamadas regiões de montes (campo magnético intenso) e vales (campo magnético fraco). O uso de espiras circulares no lugar de espiras radiais, aliado às regiões de montes e vales, permitem a construção de ciclotrons com energia máxima de 500 MeV, ou mais. Intensos campos magnéticos tem um forte efeito sobre a focalização do feixe, e os efeitos de borda devem ser sempre levados em consideração no projeto de um acelerador ciclotron.

2.3.4. FONTES DE ÍONS

Existem diversos tipos de fontes de íons com diferentes características de operação. A extração de íons positivos e negativos da fonte de íons e a geometria da região central do acelerador, são determinados em parte, pelas características da fonte de íons. Os ciclotrons podem ter tanto fontes de íons internas como externas, e na maioria dos ciclotrons comerciais, as fontes são internas. Íons carregados são geralmente produzidos por um arco de descarga elétrica em um gás, produzindo um plasma.

As fontes de íons de catodo quente e de catodo frio são as duas mais comumente usadas em ciclotrons comerciais. Na fonte de íons de catodo quente, um filamento de tungstênio aquecido é usado para manter o arco da descarga elétrica no gás. Na fonte de catodo frio, uma vez que o arco da descarga tenha sido iniciado, não há a necessidade de filamentos aquecidos para manter o plasma durante as operações normais da fonte. A distribuição espacial do plasma e a dinâmica do plasma ao sair do interior de uma fonte de íons interna, são fenômenos ainda não muito bem entendidos. Além disso, os íons apresentam uma distribuição de energia bastante ampla. Estes problemas são, em geral, resolvidos usando fendas na saída das fontes de íons, o que acaba por reduzir a intensidade do feixe produzido (número de íons por unidade de área por unidade de tempo). Por outro lado, produz feixes de partículas com perfil espacial bem definido. Assim que os íons estão fora da fonte, as partículas do feixe são “puxadas” pelo campo elétrico de uma pequena fenda chamada de extrator (*puller*), pela qual apenas passam os íons que tem a energia e as condições adequadas para prosseguir com a órbita no interior da câmara de aceleração, após ter concluído a primeira revolução. A figura 2.6 mostra a fonte de íons de catodo frio, que equipa o acelerador Cyclone 18/9 (*Ion Beam Applications* - IBA) do IPEN. O conjunto todo é geralmente chamado de região central do acelerador. Desalinhamentos nesta região resulta em um feixe fora de centro, o que pode ser detectado e corrigido por sondas internas (medidores de corrente de feixe), pelo posicionamento da fonte de íons e ajustes na intensidade do feixe.

2.3.5. SISTEMA DE VÁCUO

O vácuo no interior da câmara de aceleração de um ciclotron deve ser mantido tão bom e limpo quanto possível, de forma que o caminho livre médio das partículas seja grande o suficiente para que sejam aceleradas sem espalhamentos e de forma eficiente. No caso de ciclotrons, isto se traduz em uma pressão no interior do tanque entre 1×10^{-5} e 1×10^{-7} mm de Hg, dependendo da partícula que está sendo acelerada, se a fonte de íons é interna ou externa, e do tipo de ciclotron. Alto vácuo ($10^{-6} - 10^{-7}$ mm de Hg) é necessário para máquinas que aceleram íons negativos, ao contrário do que necessita as máquinas que aceleram íons positivos, isto porque as colisões com gás residual provocariam a retirada de um ou mais elétrons dos íons negativos (“stripping”), mudando o sinal da carga da partícula, de negativo para positivo, e consequentemente o sentido de aceleração da partícula.

Figura 2.6. Fonte de íons de catodo frio do acelerador ciclotron Cyclone 18/9 do IPEN.

Existem três tipos de bombas de vácuo comumente usadas em ciclotrons. A

primeira e mais antiga é a bomba difusora a óleo, a segunda é a bomba turbomolecular e a terceira é a bomba criogênica. As bombas difusoras a óleo são muito confiáveis e de fácil manutenção, mas tem a desvantagem de vapor de óleo poder subir e entrar no tanque de aceleração, causando depósitos de carbono em algumas superfícies mesmo com armadilhas criogênicas interpostas no caminho. A principal causa de falhas em bombas de vácuo tipo difusoras é a queima dos resistores de aquecimento. Estes aquecedores, por outro lado, podem ser facilmente substituídos e o ciclotron pode voltar a condições mínimas de operação em um curto intervalo de tempo.

As bombas turbomoleculares são muito mais limpas e com velocidade de bombeamento muito elevadas, mas tem a desvantagem de sofrer sérios danos nas pás da turbina, e até acidentes, quando há queda abrupta do vácuo devido ao rompimento de alguma janela de porta-alvo, por exemplo. Existem no mercado, bombas turbomoleculares capazes de resistir a mudanças consideráveis nos níveis de pressão, sem sofrer dano algum. Estas bombas são também muito sensíveis ao alinhamento e balanceamento do rotor, dado que sua turbina gira em altíssimas velocidades. Estas bombas devem ser protegidas de pequenos pedaços metálicos que podem ser gerados pela ruptura de janelas e folhas metálicas dos alvos. Quando estas bombas apresentam falhas, em geral é necessário a substituição da turbina, que além de ser um procedimento demorado, é muito caro.

Bombas de vácuo criogênicas, como o nome já diz, operam a ultra baixas temperaturas. O princípio de funcionamento está no fato de que substâncias gasosas aderem facilmente em superfícies resfriadas, por meio de condensação criogênica (criocondensação), absorção criogênica (crioabsorção) ou armadilha criogênica (crioarmadilhamento). De forma a serem capazes de produzir um alto ou ultra-alto vácuo, as superfícies frias (criopainéis) internas à bomba devem ser resfriadas até temperaturas suficientemente baixas, tipicamente algo em torno de 10 a 20 K (-263° C a -253° C). Um aspecto importante na operação de bombas de vácuo criogênicas é a regeneração. Visto que é uma bomba que prende gases e substâncias gasosas em sua superfície, estes acabam por se acumular durante o bombeamento, o que deve, de tempos em tempos, serem removidos, pois acabam por comprometer a eficiência da bomba. Isto é feito desligando a unidade de resfriamento, em geral um compressor de hélio, levando com isto os criopainéis até a

temperatura ambiente ou levemente mais elevada do que isto por meio de aquecedor de baixa potência. Com isto, as substâncias que estavam aderidas à superfície evaporam e podem então ser bombeadas para fora por meio de bombas mecânicas convencionais. Neste caso, é obrigatório haver uma válvula de isolamento de vácuo entre a bomba criogênica e o tanque do acelerador, pois em caso contrário, as substâncias gasosas evaporadas na regeneração da bomba migrariam também para o interior do tanque do ciclotron.

2.3.6. EXTRAÇÃO DO FEIXE DE PARTÍCULAS

A extração do feixe do interior da máquina depende muito se as partículas aceleradas são íons positivos ou negativos: os métodos são radicalmente diferentes para cada um dos casos. Se as partículas forem positivas, a extração é feita eletrostaticamente, como mostra a figura 2.7, e se as partículas são negativamente carregadas, a extração é feita pela retirada de um ou mais elétrons do íon negativo, transformando-o em um íon positivo. Como consequência, a força magnética que antes obrigava o íon negativo a efetuar curvas em um dado sentido, com a troca do sinal da carga da partícula, o mesmo campo magnético fará com que as partículas sofram uma força que leva as partículas para o lado externo do acelerador, como mostra a figura 2.8.

Uma fotografia do sistema de extração de íons positivos, evidenciando o septo e o defletor é apresentada na figura 2.9. O septo é usado para dividir o feixe extraído do feixe de circulação.

Uma fotografia de um sistema de extração de íons negativos é mostrada na figura 2.10. Uma delgada folha de carbono é usada para remover os elétrons do íon carregado negativamente. Este tipo de sistema de posicionamento da folha de carbono permite a extração de feixes de partículas com energia variável.

Figura 2.7. Extração eletrostática de partículas positivas.

Figura 2.8. Extração por folha de carbono (stripper).

Figura 2.9. Sistema de extração de íons positivos mostrando o septo (A), com a barra do defletor imediatamente atrás do septo, o medidor de corrente de prova (*beam probe*) (B) que está blindado por uma cobertura de chumbo para operações de manutenção.

Figura 2.10. Sistema de extração de íons negativos. (a) folha de carbono e (b) braço de posicionamento em um ciclotron moderno.

2.3.7. CICLOTRONS NA ATUALIDADE

A tecnologia envolvida na construção e operação dos modernos ciclotrons melhorou sensivelmente na última década. Hoje, os ciclotrons são máquinas estáveis, controladas por micro computadores, que podem produzir uma grande variedade de radioisótopos. A tecnologia que está por trás destas máquinas se tornou mais complexa, mas um conhecimento básico dos princípios e limitações práticas destas máquinas é muito útil para entender os problemas que podem surgir durante as operações normais.

2.3.8. ÍONS POSITIVOS OU ÍONS NEGATIVOS

Quase todos os ciclotrons modernos utilizam uma fonte de íons negativos. Os íons são formados em seu interior por uma descarga elétrica através de um gás, geralmente hidrogênio, e neste caso os íons formados são H^+ (prótons) e H^- (próton com dois elétrons). A vantagem de íons negativos está na fácil capacidade de se produzir ciclotrons de energia variável, extração de praticamente 100% do feixe de partículas, além de serem capazes de extrair múltiplos feixes simultaneamente. A tecnologia de fontes de íons modernas permite que estas sejam instaladas no interior do ciclotron, onde os íons são gerados diretamente na região central, ou então montadas do lado externo do acelerador, onde os íons são produzidos e depois injetados na região central para aceleração.

Obviamente, há vantagens e desvantagens em cada um destes dois tipos de fontes de íons. Com uma fonte de íons externa, o sistema de vácuo pode operar a pressões muito baixas com uma pequena perda de íons negativos por espalhamentos com o gás residual. Por outro lado, o sistema de vácuo deve ser muito eficiente e limpo (sem contaminações por óleo). Com uma fonte de íons externa, as operações de manutenção podem ser realizadas sem que seja necessário quebrar o vácuo de toda a máquina, bastando apenas isolar a fonte de íons do tanque por meio de uma válvula. Além disso, a região central não é perturbada como no caso de uma fonte de íons interna que faz parte da região central.

2.3.9. EXTRAÇÃO DO FEIXE

De forma a extrair o feixe de partículas positivas, um dispositivo eletrostático é posicionado no raio da órbita onde as partículas estão passando com a energia desejada, então o feixe é defletido para fora de seu caminho circular normal. O feixe é direcionado por este campo eletrostático para uma posição onde há uma janela de saída do tanque do ciclotron, onde há um alvo acoplado, ou então, o feixe é dirigido a uma estação de irradiação externa através de um sistema de tubos a vácuo, chamado linha de feixe (beam line). O sistema de extração por deflexão do feixe é pouco eficiente, pois cerca de 30 a 40 % do feixe é perdido devido às colisões com o defletor e superfícies vizinhas, resultando em ativação de componentes dentro do tanque de aceleração.

Com máquinas que aceleram íons negativos, o feixe é extraído pela passagem destes íons através de uma delgada folha de carbono (*stripper*), que retira os elétrons fracamente ligados ao átomo, resultando em uma troca no sinal da carga elétrica do feixe. Então, as partículas originais negativamente carregadas (H^-) ficarão agora positivamente carregadas (H^+), e o feixe tenderá a girar na direção oposta ao feixe incidente no *stripper*. Colocando portas de saída nas paredes do tanque do ciclotron, o feixe poderá ser direcionado para fora em direção a uma estação de irradiação apropriada. O recurso de energia variável é realizado pelo movimento da folha de carbono entre raios diferentes da órbita do feixe de partículas aceleradas. A extração de múltiplos feixes é feita

pela inserção de folhas de extração de forma que apenas uma parte do feixe é interceptada, permitindo que a parte restante continue seu movimento orbital até encontrar a próxima folha de extração. Com isto, não apenas dois feixes simultâneos podem ser extraídos, mas também feixes de diferentes energias e intensidades, dependendo da porcentagem do feixe que é interceptada primeiro. Em geral, o braço de extração é calibrado de acordo com sua posição radial, diretamente relacionada a energia das partículas no feixe naquela posição.

2.3.10. ENERGIA DAS PARTÍCULAS

A energia que as partículas devem ser aceleradas no ciclotron depende, é claro, do radioisótopo que se pretende produzir. Como pode ser visto na tabela 2.2, o intervalo de radionuclídeos produzidos depende da energia disponível das partículas. Esta tabela mostra apenas reações nucleares provocadas por prótons acelerados e apenas uns poucos radioisótopos que podem ser produzidos com estas energias.

Tabela 2.2. Energia dos prótons acelerados versus radionuclídeos produzidos para uso médico.

Energia dos Prótons (MeV)	Radionuclídeos facilmente produzidos
≤ 10	^{18}F , ^{15}O
11 – 16	^{11}C , ^{18}F , ^{13}N , ^{15}O , ^{22}Na , ^{48}V
17 – 30	^{124}I , ^{123}I , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{11}C , ^{18}F , ^{13}N , ^{15}O , ^{22}Na , ^{48}V , ^{201}Tl
> 30	^{124}I , ^{123}I , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{11}C , ^{18}F , ^{13}N , ^{15}O , ^{82}Sr , ^{68}Ge , ^{22}Na , ^{48}V

No entanto, este aumento no número de radionuclídeos que podem ser produzidos tem um custo, tanto em equipamentos quanto na infra-estrutura necessária. Além disso, o número de reações secundárias aumenta proporcionalmente com o aumento da energia dos prótons, e outros radionuclídeos indesejáveis podem ser produzidos. Isto é particularmente verdade para energias superiores a 30 MeV.

As produções de radioisótopos tradicionais (^{201}Tl , ^{67}Ga , ^{123}I e ^{111}In) usados na medicina nuclear tem sido feitas via reações com prótons acelerados em ciclotrons a mais

de 25 anos. Por outro lado, muitos dos radionuclídeos mais úteis podem ser produzidos com prótons de energia entre 30 e 40 MeV ou menos. Ciclotrons de energia maior do que 40 MeV são usualmente instalados em grandes laboratórios, fabricas governamentais ou privadas, onde radionuclídeos são produzidos para venda. A escolha da energia das partículas depende do radionuclídeo que vai ser produzido, assim como a escolha do acelerador, e ainda se estes radionuclídeos serão distribuídos para outras localidades.

2.4. OUTROS TIPOS DE ACELERADORES

2.4.1. ACELERADOR TANDEM

O acelerador Tandem em cascata usa uma diferença de potencial eletrostático relativamente grande para acelerar partículas. Este tipo de acelerador foi desenvolvido primeiramente por Van de Graaff em 1931. O princípio físico de funcionamento destas máquinas está no fato de que partículas eletrizadas colocadas no interior de condutor metálico oco deve se mover para o lado de fora da superfície do condutor. O acelerador baseado no princípio de Van de Graaff em uso atualmente para produção de isótopos empregados em tomografias PET é o Tandem em cascata²⁴. este tipo de acelerador é composto de quatro seções:

- (1) A fonte de íons;
- (2) Primeira câmara de aceleração;
- (3) Terminal de alta tensão com uma folha de carbono; e
- (4) Segunda câmara de aceleração.

A figura 2.11 traz uma ilustração simples de um acelerador Tandem. Uma grande quantidade de cargas positivas são acumuladas no centro da máquina, na região onde está montada a folha de carbono. Íons negativos são produzidos na fonte de íons e inseridos na primeira câmara de aceleração. O alto potencial positivo do centro da máquina atrai estes íons até que eles atravessam a folha de carbono, perdendo seus elétrons fracamente ligados, tornando-se então íons positivos, que são agora repelidos para longe do

centro devido ao potencial de mesmo sinal que as cargas. Devido à inércia, as partículas continuam seu movimento pela segunda câmara de aceleração, em direção ao alvo. Com este arranjo, as partículas ganham em energia o dobro da diferença de potencial entre a fonte e a região central multiplicada pela carga elétrica de cada íon, ou seja, se a diferença de potencial de 100 kV, a energia de cada partícula será de 200 keV.

Figura 2.11. Esquema simplificado de um acelerador tipo Tandem.

2.4.2. ACELERADOR VAN DE GRAAFF

O acelerador Van de Graaff mais comum é o auto-excitado. Um gerador auto-excitado usa o fato de que quando dois materiais isolantes elétricos diferentes são atritados um contra o outro, o resultado é que cargas elétricas (elétrons) serão retirados de um dos materiais ficando acumuladas no outro, e desta forma cada um deles estará sujeito a um potencial eletrostático devido ao acúmulo destas cargas.

O gerador consiste de um terminal de alta tensão oco e metálico, de bordas arredondadas, muito bem isolado do potencial da terra, montado sobre uma coluna isolante, e o sistema de carregamento consiste de uma correia sem fim de material também isolante que é mantida em movimento contínuo entre este terminal isolado e a terra. As cargas elétricas são transportadas por esta correia até o interior do terminal oco, onde são

removidas. O máximo potencial elétrico que pode ser mantido neste terminal, depende de sua geometria e da rigidez dielétrica do meio que circunda o terminal. Uma ilustração bastante simples de um gerador de Van de Graaff é mostrada na figura 2.12.

Figura 2.12. Esquema simplificado de um gerador Van de Graaff.

O acelerador Pelletron[®] é um acelerador de Van de Graaff modificado e foi desenvolvido em meados da década de 1960 como uma melhoria às correias de transporte de cargas dos primeiros geradores, que foram substituídas por esferas (pelotas) de transporte, por isto o nome Pelletron (“pellets” quer dizer pelotas em inglês). As correias apresentavam uma série de empecilhos e dificuldades operacionais, incluindo instabilidades de tensão no terminal e possibilidade de faiscamentos indesejados, o que poderia provocar sérios danos à estrutura do gerador. Além disso, o acúmulo de poeira sobre as correias de transporte, exigiam operações frequentes de limpeza no interior dos tanques e das câmaras de aceleração. O Pelletron rapidamente se provou ser mais durável e confiável, ao produzir maior estabilidade de tensão no terminal, além da eliminação dos problemas de acúmulo de poeira sobre as antigas correias. Este tipo de gerador não limita o potencial máximo do terminal, sendo que há Pelletrons em operação atualmente com tensões da ordem de 25 MV ou mais. Entretanto, aceleradores Vande Graaff são utilizados principalmente em pesquisas em Física Básica e raramente são empregados para produção

de radioisótopos.

2.5. CICLOTRONS SUPERCONDUTORES

Os princípios básicos de funcionamento e operação dos ciclotrons supercondutores são os mesmos que os dos ciclotrons convencionais. Usando imãs supercondutores, estes ciclotrons podem ser feitos muito mais compactos, mas por outro lado, as bobinas de corrente devem ser resfriadas até temperaturas de hélio líquido. A massa do magneto é cerca de 5 vezes menor do que a massa dos aceleradores convencionais. Como o imã é supercondutor, a energia necessária para alcançar os valores de campo magnético é bem menor. Quanto maior o campo magnético, menos espaçadas são as órbitas das partículas aceleradas, que no caso de ciclotrons supercondutores, são H^- . Portanto o sistema usa folhas de carbono para extrair prótons.

2.6. ESCOLHA DE UM ACELERADOR

Existem algumas considerações práticas que devem ser levadas em consideração na escolha do tipo de acelerador para cada situação de interesse. O principal fator é o custo inicial, a confiabilidade, os riscos radiológicos, custos de instalação e pronta assistência do fabricante em caso de manutenções corretivas e preventivas. Existem vários aspectos técnicos que devem ser considerados na escolha do acelerador certo, e algumas destas estão listadas na tabela 2.3.

A primeira consideração que deve ser levada em conta é se um dado acelerador é capaz ou não de produzir uma quantidade suficiente de radioisótopos para as necessidades específicas da instalação. Independente do tipo de acelerador a ser instalado, deve-se manter em mente a possibilidade de obtenção de feixes de várias partículas diferentes, como prótons, dêuterons, ^3He e ^4He . As seções de choque para reações nucleares para produção da maioria dos radioisótopos são muito bem conhecidas e caracterizadas, e os rendimentos práticos como função da energia das partículas são

também bem conhecidos. A seleção de um acelerador é determinada na prática ou pela energia das partículas (tabela 2.1) ou pela reação nuclear de interesse. Por exemplo, para uma instalação que deseja produzir apenas os isótopos mais convencionais usados em tomografia PET (^{11}C , ^{13}N , ^{15}O e ^{18}F), um ciclotron de Nível I que fornece prótons de 10 MeV de energia deve ser suficiente.

Tabela 2.3. Características gerais de aceleradores para produções de radioisótopos.

Tipo de acelerador	Vantagens	Desvantagens
Ciclotron de íons positivos	Versatilidade Fácil manutenção;	Alto custo Alta ativação
Ciclotron de íons negativos	Eficiência de extração Baixa ativação Uniformidade do feixe	Alto custo Necessidade de alto vácuo Manutenção das folhas de extração
Ciclotrons supercondutores	Tamanho compacto Baixo consumo de energia	Necessidade de hélio líquido Manutenção cara
LINAC	Operação estável Baixo consumo de energia	Tamanho Engenharia de alvos
Tandem em cascata	Baixo consumo de energia Baixo custo	Engenharia de alvos
LINAC de He^{3+}	Baixo consumo de energia Operação estável	Baixa Atividade Específica Engenharia de alvos

Por outro lado, um centro que deseja produzir isótopos usados apenas em tomografias SPECT (^{201}Tl , ^{67}Ga , ^{123}I e ^{111}In) deve considerar um ciclotron capaz de fornecer prótons de mais alta energia, como dos Níveis II ou III.

De todos os tipos e aceleradores existentes atualmente, ciclotrons são de longe os mais utilizados para produções de radioisótopos voltados para tomografias PET e SPECT. Portanto, é de se esperar que exista uma grande variedade de informações sobre aplicações de ciclotrons em comparação com outros tipos de aceleradores. Em geral, os ciclotrons se mostraram de fato muito confiáveis, proporcionando condições ideais para produções rotineiras de isótopos radioativos em quantidades muito satisfatórias além de altas atividades específicas. LINAC's e aceleradores Van de Graaff também tem sido usados para produções de alguns radioisótopos, mas não comumente. Embora o LINAC seja um acelerador extremamente estável, este tipo de acelerador tem sido usado onde

existem físicos de aceleradores, capazes de interferir na máquina quando necessário, mas que não tem nenhuma história em instalações de produção de radioisótopos. Entretanto, quanto mais aceleradores lineares forem instalados em locais de produção de radioisótopos, mais conhecimentos e técnicas poderão ser desenvolvidos de forma a torná-los muito mais confiáveis. O acelerador Tandem em cascata e a máquina de aceleração por quadrupolo de radiofrequência, já foram construídos e testados, mas se mostraram muito limitadas para produções de radionuclídeos.

2.6.1. RENDIMENTO NAS PRODUÇÕES DE RADIOISÓTOPOS

Para produções rotineiras de radionuclídeos, o rendimento prático pode ser bastante diferente dos valores de saturação calculados e apresentados pela literatura. A saturação ocorre quando a taxa de produção do radioisótopo se iguala a sua taxa de decaimento. Para qualquer radionuclídeo o valor da atividade de saturação R é dado por:

$$R = N \cdot \lambda / (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2.4)$$

onde λ é a constante de decaimento do radioisótopo e N é o número de átomos na amostra. Em termos práticos, a saturação é alcançada em cerca de cinco meias-vidas do radionuclídeo. Por exemplo, para que a atividade de saturação, numa produção de ^{18}F seja atingida, o tempo de irradiação deve ser de pelo menos 9 horas, que é um tempo muito maior do que aquele normalmente empregado neste tipo de alvo. Por outro lado, nas produções de ^{15}O , a atividade de saturação é alcançada em torno de 10 – 12 minutos, que é um tempo mais prático de irradiação. Atualmente, cada construtor garante uma atividade de saturação para cada radionuclídeo produzido, sob certas condições bem definidas. Esta é uma consideração primária, especialmente se aplicações clínicas estão em foco.

A forma química do radioisótopo é também de interesse maior, considerando as qualidades e características de qualquer acelerador. O material do alvo deve resistir às partículas do feixe intensamente ionizantes e deve ser capaz de resistir também ao intenso campo de radiação que resulta após longos períodos de bombardeamento. As questões relativas à forma química do alvo, tanto antes quanto após o

bombardeamento , foram assunto de inúmeras pesquisas na década de 1950. Algumas condições específicas do material bombardeado podem ser, até certo ponto manipuladas, de forma a fornecer os precursores desejados para sínteses de moléculas marcadas.

Outro aspecto relacionado à química esta na escolha entre aceleradores de prótons apenas ou aceleradores de duas ou mais partículas, prótons e dêutrons, por exemplo. Se a escolha feita for para um acelerador de prótons apenas (tabela 2.1), os alvos deverão ser feitos com isótopos de material enriquecido para produções dos quatro radioisótopos usados em tomografia PET. Se um acelerador de duas ou mais partículas é escolhido, ^{15}O e ^{13}N podem ser produzidos usando alvo de material natural, não havendo a necessidade de enriquecimento. Outros radioisótopos podem necessitar de alvos de material enriquecido tanto para irradiações com prótons tanto com dêutrons.

2.6.2. CICLOTRONS COMERCIAIS

Existem vários tipos e modelos de ciclotrons que já comprovaram ser livres de problemas muito sérios, enquanto existem outros que requerem uma atenção especial constante. Muitas vezes, estes dois extremos são encontrados em aceleradores de um mesmo fabricante e dependem inteiramente do projeto do ciclotron. Com o advento dos osciladores baseados em cristais, computadores e programas de computador capazes de realizar o mapeamento de campos magnéticos em tempo real, controlar o posicionamento de fontes de íons, controlar a tensão e a corrente de arco, dentre muitas outras, o tempo dispendido atualmente para sintonizar um acelerador ciclotron foi drasticamente reduzido. Os melhores indicadores de como uma dada máquina irá funcionar estão ligados ao seu comportamento no passado, aliado com as experiências vividas por outros centros de produção que operam um acelerador similar.

2.6.3. CUSTOS DE OPERAÇÃO E MANUTENÇÃO

A tabela 2.4 apresenta valores típicos de gastos nas instalações da Gerência. De Aceleradores Ciclotrons do IPEN. Estes incluem operações de rotina e material de

consumo. Os custos exatos de todos estes itens depende muito dos fornecedores e da infraestrutura disponível.

Tabela 2.4. Estimativa de custos de operação da Gerência de Aceleradores Ciclotrons do IPEN.

Descrição	Quantidade por ano	Custo estimado (R\$/ano)
Eletricidade (para operação do ciclotron)	250 MWh	200.000,00 ^a
Eletricidade (para a instalação)	100 MWh	80.000,00 ^a
Peças e suplementos	NA ^b	20000
Manutenção anual	1	100.000,00 – 160.000,00

^a com base no custo de R\$0,80/kWh

^b Não aplicável

2.6.4. MANUTENÇÃO

As manutenções de rotina são de extrema importância para todos os aceleradores. Visto que estão em constante operação, sendo que em alguns casos, em condições extremas de tempo ou de corrente de feixe, algumas peças tendem a sofrer um desgaste natural mais rápido, e por este motivo devem ser inspecionadas regularmente. As potências envolvidas com uso de ciclotrons giram em torno de 30 kW ou mais, e uma cadeia de fornecimento de energia confiável deve estar disponível, sendo um fator que requer atenção especial. Anéis e vedações, especialmente em partes móveis, apresentam um tempo de vida relativamente curto e precisam ser verificados e substituídos, quando for o caso, com regularidade. As bombas de vácuo, principalmente se forem do tipo criogênica, são fatores chave merecendo especial atenção ao longo do tempo.

2.7. CONCLUSÕES

Este capítulo procurou fornecer uma breve introdução sobre os vários tipos de aceleradores, suas características e seus usos práticos na produção de radioisótopos para aplicações clínicas. Comparações entre vantagens e desvantagens de cada um dos tipos

apresentados indicam que os ciclotrons são de longe os aceleradores mais preferidos para estas aplicações. A escolha de um acelerador em detrimento de outro, depende muito dos objetivos de produção de radioisótopos destinados à instalação, bem como da localização geográfica do acelerador.

Há, entretanto, algumas questões chave a serem respondidas quando da escolha de um acelerador para produções de radioisótopos para aplicações em tomografias PET. Uma pequena lista destas questões é mostrada abaixo:

- (a) O acelerador produzirá a quantidade necessária de radioisótopos para suas operações?
- (b) A máquina é confiável?
- (c) Qual é o custo inicial comparado aos custos de operação?
- (d) Quais as pessoas necessárias para operar e manter o acelerador em funcionamento e todos os dispositivos associados?
- (e) Qual será a blindagem necessária para este acelerador?
- (f) Qual será a potência elétrica total necessária para atender a todas as necessidades da instalação, com relativa folga?
- (g) Quais serão as necessidades de água tanto para refrigeração quando para uso comum, e se há disponibilidade ou reservatórios próximos.
- (h) Há assistência técnica disponível do fabricante, se há, a que custo?
- (i) Como os aspectos relativos à segurança e proteção radiológica serão implantados e documentados?
- (j) Como as emissões de radiação para o meio ambiente serão monitoradas e controladas?
- (k) Os materiais necessários para os alvos (enriquecidos) estão disponíveis a qualquer tempo.

Esta lista de questões é o marco inicial, e respostas devem ser encontradas para todas elas, levando em consideração o tipo de acelerador, antes que qualquer decisão seja tomada. A melhor maneira de agir neste caso, é sempre obter o máximo possível de informações a cerca dos objetivos propostos e as possíveis soluções para eles.

3. TEORIA DE PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS

A produção de radioisótopos para procedimentos biomédicos, tais como os diagnósticos por imagens ou terapias, só foi possível graças à descoberta de que certas reações nucleares podiam ser provocadas no interior de reatores nucleares ou então pelo bombardeamento de alguns tipos de materiais por partículas carregadas em aceleradores. Nos reatores, as reações nucleares são feitas por nêutrons, enquanto que nos aceleradores as reações são feitas com partículas eletricamente carregadas, como prótons, dêutrons, partículas α dentre outras. Muito embora o ^{99}Mo para o gerador de tecnécio seja produzido em reatores, e os diagnósticos usando este radioisótopo representam cerca de 90% de todos os procedimentos efetuados em medicina nuclear em todo o mundo, este capítulo será focado na utilização de aceleradores de baixa energia (< 50 MeV para prótons e < 20 MeV para dêutrons) para produções de radioisótopos.

Uma grande vantagem no uso de aceleradores está no fato de que, em geral, os materiais do alvo e do produto são quimicamente diferentes, o que facilita muito os processos de separação após a irradiação. Por outro lado, alguns fatores devem ser levados em consideração, tais como pesquisas adequadas sobre quais os melhores elementos que devem ser irradiados e em quais condições para que a separação seja possível, obtenção de altas Atividades Específicas, com a mínima produção de impurezas ou outros isótopos indesejáveis, selecionando para isto uma janela adequada de energia de irradiação.

Como já mencionado neste trabalho, os aceleradores atualmente disponíveis no mercado podem ser classificados em três categorias distintas. Em primeiro lugar, se encontram aqueles aceleradores instalados em universidades ou centros especializados de pesquisas, máquinas tipicamente multi-partículas com energia entre 30 e 50 MeV. Depois, encontram-se os aceleradores instalados em hospitais, que geralmente são dedicados apenas às produções de radioisótopos para tomografias PET (^{11}C , ^{13}N , ^{15}O e ^{18}F). Estes ciclotrons aceleram prótons com energia no intervalo de 10 a 19 MeV, e em alguns casos muito específicos podem também acelerar dêutrons com energia entre 5 e 9 MeV. Em terceiro lugar, vem os ciclotrons usados na indústria de radiofármacos para produções em

larga escala. São tipicamente aceleradores de prótons com energia de 30 MeV, apesar de que alguns usarem energias mais baixas e serem dedicados as produções de ^{103}Pd .

Muitos Laboratórios Nacionais, como são os casos do IPEN em São Paulo, do IEN no Rio de Janeiro, do CDTN em Belo Horizonte e do CRCN em Recife, citando apenas quatro casos no Brasil, estão muito envolvidos com as produções de radioisótopos que não são produzidos por fabricantes privados (caso do ^{18}FDG), sendo que no caso brasileiro, 100% de toda esta produção tem sido levada a cabo por estes Institutos. Apenas como exemplos, existem os casos do ^{82}Sr e do ^{68}Ge que são geradores do ^{82}Rb e ^{68}Ga respectivamente, e produção fontes para calibração de tomógrafos PET. Estas máquinas operam tipicamente aceleram apenas prótons, com energia abaixo dos 100 MeV e corrente de feixe entre 150 e 200 μA , disponíveis apenas no exterior.

As limitações destas instalações que dispõem de aceleradores de altas energias está na dificuldade de agendamento de horários, já que a maioria dessas instalações possuem máquinas que foram projetadas e construídas para atender aos programas de pesquisa em Física Nuclear, sendo que seu uso para as aplicações médicas eram feitas de forma muito ocasional, nos períodos de ociosidade das máquinas. Em geral, nenhum destes laboratórios possuem um programa operacional totalmente dedicado à Física Médica.

Outro problema é a carteira de substâncias produzidas. Devido a alta energia dos feixes de prótons, o mecanismo de reação dominante acaba sendo a fragmentação (espalação) do alvo, que produz não apenas uma, mas uma vasta quantidade de outros isótopos do mesmo elemento, radioativos ou não, e isto afeta de maneira prejudicial a AE do produto desejado.

Existem três grandes razões porque aceleradores são largamente usados para produzir radioisótopos e porque estas máquinas se tornaram muito populares. Em primeiro lugar, radioisótopos produzidos em aceleradores tem características de decaimento mais favoráveis (partícula emitida, meia-vida, raios- γ , etc.) em comparação com radioisótopos produzidos em reatores nucleares; em segundo lugar, radioisótopos com alta AE não

podem ser produzidos em reatores; por último, o acesso a um reator nuclear é muito limitado (talvez a principal das razões). O número de reatores nucleares disponíveis para a comunidade científica tem diminuído consideravelmente nos últimos anos, em comparação com o crescimento no número de ciclotrons. Esta redução no número de reatores disponíveis é um problema que foi previsto em 1983, e de lá para cá a tendência é se agravar cada vez mais.

3.1. MODELOS DE REAÇÕES NUCLEARES

Do ponto de vista da Mecânica Clássica, uma reação entre uma partícula carregada e um núcleo atômico não pode ocorrer se a energia do centro-de-massa (CM) de ambos os corpos for menor do que a altura da barreira de Coulomb. No caso de produção de radioisótopos em um ciclotron, isso implica que a partícula acelerada e direcionada ao alvo deve ter uma energia maior do que:

$$V_C(R) = \frac{Zze^2}{R} \quad (3.1)$$

onde Z e z são os números atômicos do núcleo e da partícula acelerada, respectivamente, e é a carga elétrica elementar e R é a distância que separa os dois corpos, em centímetros.

Na verdade, estas reações ocorrem para energias bem abaixo desta barreira de potencial devido ao efeito de tunelamento quântico.

3.2. NÚCLEOS COMPOSTOS

Os mecanismos exatos pelos quais as reações nucleares acontecem ainda não são muito bem conhecidos, e um dos objetivos deste trabalho é apresentar um modelo físico-matemático que apresente resultados que mais se aproximem dos resultados obtidos experimentalmente.

O primeiro, e um dos modelos de maior sucesso, foi proposto por Niels Bohr em 1936, no qual uma reação nuclear ocorre por dois processos distintos. O primeiro processo é a formação de um núcleo “composto”, que então se decompõe em produtos de decaimento. Um corolário importante deste modelo é que os núcleos compostos “esquecem” como eles foram formados, exceto as leis fundamentais de conservação de energia e momento²⁵. Quando a partícula incidente combina com o núcleo alvo, ela perde sua identidade, e a energia total do núcleo composto é dividida por todas as partículas nucleares. Em essência, o núcleo passa por um estágio de equilíbrio antes de se decompor pela emissão de uma ou mais partículas.

O próximo processo na reação nuclear é a decomposição do núcleo composto. Esta decomposição pode se dar por vários meios, usualmente chamados de “canais”. Estes canais não dependem em nada da forma como o núcleo foi formado e estão apenas ligados pelas leis de conservação de massa-energia, carga, momento angular e spin. Estes dois processos são considerados independentes um do outro para qualquer instante de tempo. A quantidade total de energia de excitação contida no núcleo é dada pela seguinte equação:

$$U = \frac{M_A}{M_A + M_a} T_a + S_a \quad (3.2)$$

onde U é a energia de excitação, M_A é a massa do núcleo alvo, M_a é a massa da partícula incidente, T_a é a energia cinética da partícula incidente e S_a é a energia de ligação da partícula incidente no núcleo composto.

O núcleo assim formado pode posteriormente se decompor por diversos canais como mostrado na figura 3.1.

3.3. CINEMÁTICA DAS REAÇÕES

Quando um núcleo composto se desintegra, a energia cinética de todas as

partículas pode ser maior ou menor do que a energia cinética dos reagentes. Se a energia das partículas resultantes da decomposição do núcleo for maior, então a reação é dita ser exoenergética. Se a energia cinética for menor, então a reação é dita ser endoenergética.

Figura 3.1. Formação de um núcleo composto com os possíveis canais de decaimento. Os símbolos “a” representam as partículas incidentes, “b” e “c” as partículas emitidas, enquanto “A”, “B” e “C” são os núcleos

3.3.1. O VALOR “Q”

Se a reação é endoenergética, então uma quantidade maior de energia deve ser fornecida para que a reação aconteça. A magnitude desta diferença é chamada de valor “Q” da reação. Se a reação é exoenergética, os valores de Q são positivos. Um exemplo de canais possíveis de reações é mostrado na figura 3.2, com os valores correspondentes de Q . Em qualquer reação nuclear, as mudanças na energia são bastante grandes, de forma que as mudanças nas massas das partículas antes e após a reação ter ocorrida são observáveis. O equivalente em massa de Q é dado pela seguinte relação:

$$Q(\text{MeV}) = 931,4 \Delta M \quad (3.3)$$

Em (3.3), ΔM é dado pela expressão abaixo:

$$\Delta M = (m_p + M_A) - (m_q + M_R) \quad (3.4)$$

onde, m_p é a massa do próton incidente; M_A é a massa do alvo; M_R é a massa do produto resultante da reação nuclear; e m_q é a massa da partícula emitida após a reação.

A seção de choque de uma reação nuclear representa a probabilidade total de que um núcleo composto seja formado e então decomposto através de um dos possíveis canais. Muitas vezes esta probabilidade também é chamada de função de excitação. Esta função determina qual quantidade de um determinado radionuclídeo poderá ser produzida em um dado ciclotron e os níveis de contaminantes de outros radioisótopos que poderão estar presentes no material do alvo.

Figura 3.2. Valores Q e limiares de energia da reação nuclear entre um deuteron e um núcleo de ^{14}N após a formação do composto ^{16}O .

Um exame detalhado das várias teorias de como uma partícula carregada interage com um núcleo atômico para produzir uma transmutação nuclear está fora do escopo deste trabalho, mas uma descrição generalizada de como estas interações acontecem pode fornecer uma luz sobre os parâmetros que são mais importantes para a produção de radioisótopos e, portanto, um entendimento melhor para quais reações são possíveis para um dado valor da energia cinética da partícula incidente. Esta descrição também pode fornecer uma visão sobre o quão importante são as reações concorrentes dentro de uma dada condição de irradiação.

3.4. NOMENCLATURA

Se um átomo de ^{13}C é irradiado por um feixe de prótons para produzir um núcleo de ^{13}N com a emissão de um nêutron, ou um núcleo de ^{20}Ne é bombardeado por um feixe de dêuterons para produzir um núcleo de ^{18}F com a concomitante emissão de uma partícula α , então estas reações serão escritas de forma abreviada como segue:

3.5. ESTIMATIVAS DO MODELO

Usando o modelo proposto por Niels Bohr, é possível fazer algumas observações sobre o comportamento da seção de choque das reações nucleares. Como já mencionado, a seção de choque é uma medida da probabilidade de que uma dada reação nuclear aconteça e tem dimensão de área (cm^2). Para qualquer reação nuclear, a seção de choque pode ser representada pela seguinte relação:

$$\sigma_i = \sigma_{com} \left(\frac{P_i}{\sum P_j} \right) \quad (3.6)$$

onde σ_i é a seção de choque para um particular produto i ; σ_{com} é a seção de choque para formação do núcleo composto; P_i é a probabilidade do processo i ; e $\sum P_j$ é a soma das probabilidades de todos os processos possíveis.

A expressão analítica de σ_{com} é extremamente complexa de se obter, mas algumas generalizações qualitativas podem ser feitas²⁶:

- a) σ_{com} é pequena, mas finita para energias de bombardeamento muito abaixo da altura da barreira de Coulomb;
- b) σ_{com} aumenta muito rápido em função da energia cinética das partículas

incidentes quando esta energia é menor do que a altura da barreira, apresentando um comportamento típico de uma barreira de Gamow;

c) σ_{com} não atinge seu máximo valor quando a energia cinética das partículas incidentes é igual a altura da barreira;

d) σ_{com} se aproxima assintoticamente de um valor máximo que é simplesmente a área geométrica do núcleo alvo, πR^2 , onde R é o raio nuclear, quando a energia cinética é muito maior do que a altura da barreira.

A partir destas considerações, é possível obter algum conhecimento sobre as seções de choque de reações nucleares. A barreira de Coulomb para prótons incidindo sobre elementos mais pesados é da ordem de 10 MeV. Portanto, é pouco provável que as reações entre prótons e núcleos pesados apresentem uma seção de choque significativa para energia cinética abaixo deste valor. Se a partícula incidente for uma partícula α , a altura da barreira cresce para 25 MeV, de forma que esta energia é usualmente necessária antes que a intensidade da seção de choque de reação se torne significativo. Dos valores Q de várias reações nucleares, é possível fazer uma estimativa do valor limiar desta reação. Estas regras também podem fornecer alguma informação sobre as probabilidades de que as reações desejadas aconteçam e daquelas indesejadas, para uma dada situação. Na mesma linha de raciocínio, é possível estimar as energias necessárias liberação de um ou mais nêutrons. Para prótons de mais baixas energias incidindo sobre núcleos leves, a emissão de um nêutron usualmente ocorre para valores da energia cinética entre 2 e 8 MeV, e a probabilidade diminui ou permanece a mesma para energias maiores do que estas. O segundo nêutron necessitará de uma energia entre 6 e 12 MeV, e maiores energias serão necessárias para outros nêutrons. Existe, é claro, alguma sobreposição entre os perfis de emissão, mas, pela escolha cuidadosa do intervalo de energia das partículas incidentes sobre o alvo, é possível minimizar uma dada reação em favor de outra.

3.5.1. TAXAS DE PRODUÇÃO E FUNÇÃO DE EXCITAÇÃO

A taxa de produção de um radionuclídeo depende de uma série de fatores, incluindo a dependência da seção de choque de reação como função da energia cinética das

partículas incidentes, a densidade superficial de núcleos (núcleos/cm²) no alvo, que determinará a energia das partículas emitidas, e a corrente do feixe de partículas incidentes. A taxa de produção é dada por:

$$-\frac{dn}{dt} = R = n I (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_s}^{E_0} \frac{\sigma(E)}{dE/dx} dE \quad (3.7)$$

onde R é o número de nuclídeos formados por unidade de tempo; n é a densidade superficial de núcleos no alvo; I é a corrente do feixe de partículas incidentes; λ é a constante de decaimento do nuclídeo formado, que é igual a $\ln(2)/T_{1/2}$; t é o tempo de irradiação em segundos; σ é a seção de choque de reação, ou probabilidade de interação, expressa em cm², e é uma função explícita da energia cinética das partículas incidentes, como mostra a figura 3.3; E é a energia cinética das partículas incidentes (MeV); x é a distância (cm) percorrida pelas partículas incidentes no interior do alvo; e a integral é calculada da energia inicial até a energia final das partículas ao longo do caminho percorrido dentro do alvo.

É de interesse histórico notar que a unidade de seção de choque é o “barn” (celeiro em inglês), que equivale a 10^{-24} cm². A expressão celeiro vem do fato de que a probabilidade para um nêutron interagir com um alvo é proporcional a área do núcleo, que comparado com o tamanho do nêutron, é tão grande quanto um celeiro.

Em todos os casos, a seção de choque para uma particular reação nuclear deverá ou ser encontrada na literatura especializada ou então ser medida, pois as estimativas teóricas destes parâmetros não são precisas tanto quanto se deseja, especialmente quando se trata de alvos feitos de núcleos leves.

Experimentalmente, a seção de choque de uma reação nuclear qualquer pode ser reduzida a²⁷:

$$R_i = I n x \sigma_i \quad (3.8)$$

onde R_i é o número de processos do tipo “ i ” que ocorrem no alvo, por unidade de tempo; I é a corrente de feixe; n é o número de núcleos por cm^3 do alvo; σ_i é a seção de choque para a reação específica em cm^2 ; e x é a espessura do alvo em cm.

Figura 3.3. Função de excitação para a reação $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$, mostrando a dependência da seção de choque com a energia.

Esta relação é uma simplificação, que pode ser conseguida por meio de algumas considerações, tais como, a corrente do feixe é uma constante durante todo o tempo de irradiação, os núcleos no interior do alvo estão distribuídos de forma uniforme, a seção de choque não depende da energia das partículas incidentes para todo intervalo de energia usado na irradiação. Assumindo estas considerações, a seção de choque pode então ser reduzida a:

$$\sigma_i = 2.678 \times 10^{-10} AN_i / It \rho x \quad (3.9)$$

onde σ_i é a seção de choque para a reação “ i ” em *mbarns*, para o intervalo de energia em questão; A é a massa atômica do material do alvo, em unidades de massa atômica; N_i é o número de núcleos criados durante a irradiação; t é o tempo de irradiação em segundos; ρ é a densidade do alvo em g/cm^3 ; x é a espessura do alvo em cm; e I é a corrente de feixe em μA .

Para cálculos de rendimentos, a literatura especializada assume 100% de enriquecimento do material alvo, salvo indicações contrárias, de forma que para os cálculos dos rendimentos práticos, deve-se usar a grau de enriquecimento do material do alvo que está sendo irradiado. Para determinar a espessura do alvo, pode-se empregar várias aproximações, mas o método atual mais fácil e amplamente empregado, tem sido o uso de um programa de computador, desenvolvido nos laboratórios da IBM e é chamado “*Stopping and Range of Ions in Matter*” (SRIM). Este programa calcula de forma bastante simples o poder de freamento de uma grande variedade de materiais, incluindo compostos^{28,88}.

3.5.2. FATOR DE SATURAÇÃO E RENDIMENTO PRÁTICO

A taxa de produção, obviamente, é afetada pelo fato dos núcleos resultantes serem radioativos e, portanto, vão decair em algum momento. Para nuclídeos de meia-vida curta, a competição entre formação e decaimento chegará no equilíbrio para tempos de irradiação suficientemente longos. Este ponto é chamado de saturação, o que significa que já não mais importa quanto tempo mais a irradiação continue, a taxa de produção será igual à taxa de decaimento, de forma que a atividade será uma constante.

3.5.3. TAXA DE PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS

Como já visto anteriormente, a taxa de formação neste caso é dada pela seguinte relação:

$$R = \frac{N \lambda}{(1 - e^{-\lambda t})} \quad (3.10)$$

onde R é a taxa de formação do núcleo; N é o número de núcleos presentes ao final da irradiação; e λ é a constante de decaimento do nuclídeo formado.

O termo no denominador de (8) é também chamado de Fator de Saturação (FS), e relaciona a produção de núcleos radioativos devido à irradiação com o decaimento dos núclídeos que foram criados anteriormente.

Fica claro então porque a corrente de feixe deve ser considerada constante, pois uma variação em sua intensidade afetará diretamente no número de núcleos formados por unidade de tempo, em comparação com o número de núcleos que estão desaparecendo devido ao decaimento radioativo. Substituindo o termo N_i/t que aparece na equação (3.9) por (3.10), resulta:

$$\sigma_i = 2.678 \times 10^{-10} \frac{A \lambda N_i}{I \rho x (1 - e^{-\lambda t})} \quad (3.11)$$

onde σ_i é a seção de choque para a reação nuclear “i” (mb); A é a massa atômica dos átomos do alvo (u.m.a.); λ é a taxa de decaimento do núcleo formado (s^{-1}); ρ é a densidade do material do alvo (g/cm^3); t é o tempo de irradiação (s); x é a espessura do alvo (cm); e I a corrente de feixe (μA).

Tanto o tempo de irradiação quanto a constante de decaimento são expressas em segundos, isto se deve ao fato da corrente de feixe ser expressa em μA , que equivale a $6,2 \times 10^{12}$ cargas/segundo.

3.5.4. FATOR DE SATURAÇÃO

Para tempos de irradiação curtos, a fração de núcleos produzidos é chamada de Fator de Saturação, dada por $1 - e^{-\lambda t}$, onde λ é a constante de decaimento do núcleo formado e t tempo de irradiação. É evidente que um tempo de irradiação igual ao tempo de meia-vida, resultará em uma saturação de 50%. Devido a razões práticas, os tempos de irradiação raramente ultrapassam três meias-vidas, o que equivale a uma saturação de 90%, exceto para os radioisótopos de meia-vida muito curta. Os limites práticos de produção de um dado radionuclídeo são determinados pela meia-vida do isótopo. É relativamente fácil

chegar próximo da saturação nas produções de ^{15}O , que tem 2 minutos apenas de meia-vida; mas não é nada aconselhável irradiar alvos de água enriquecida para produzir ^{18}F até o ponto de saturação, porque o tempo de irradiação seria excessivamente longo. Quando o FS é plotado em função da razão entre o tempo de irradiação e o tempo de meia-vida do radioisótopo produzido, pode ser claramente visto (figura 3.4) que com o aumento da meia-vida, um compromisso deve ser assumido entre o rendimento desejado e a duração da irradiação.

Figura 3.4. Gráfico do Fator de Saturação (FS) em função da razão entre o tempo de irradiação e o tempo de meia-vida.

Para irradiação de uma meia-vida, obtêm-se 50% de rendimento de saturação. Para uma irradiação de duas meias-vidas obtêm-se 75% e assim em diante.

Para radioisótopos de meia-vida longa, as taxas de produção são usualmente expressas em termos de dose integrada ou carga total integrada ao alvo ($\mu\text{A.h}$). Por exemplo, para um nuclídeo de meia-vida longa como o ^{82}Sr ($T_{1/2} = 25 \text{ d}$), a quantidade de radionuclídeos ao final da irradiação será essencialmente a mesma se a irradiação for feita com $100 \mu\text{A}$ em 1 h ou $2 \mu\text{A}$ em 50 h, pois em ambos os casos a dose integrada terá sido de $100 \mu\text{A.h}$. Para radioisótopos de meia-vida mais curta como o ^{18}F , as duas condições de irradiação levarão a resultados completamente diferentes.

De forma a otimizar a produção de um radioisótopo em particular, as seguintes condições de produção devem ser levadas em conta:

- O limiar de energia para a reação desejada;
- A energia para a qual o rendimento é máximo;
- A forma química do alvo;
- A forma física do alvo;
- A forma química do produto desejado;
- A forma física do produto desejado;
- A fácil separação do produto do alvo.

3.5.5. O EXEMPLO DO ^{18}F

Para ilustrar as aplicações destas estimativas, o caso onde o ^{18}F é necessário na forma de fluoreto é considerado. As duas reações nucleares mais largamente usadas para produzir ^{18}F são $^{20}\text{Ne}(\text{d},\alpha)^{18}\text{F}$ e $^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}$. Ambas as reações tem relativamente baixos limiares de energia (0 – 2 MeV), e o máximo rendimento ocorre para energias menores do que 10 MeV por partícula (Figuras 3.3 e 3.5).

Entretanto, a reação (p,n) tem uma seção de choque muito maior, de modo que a quantidade de ^{18}F produzida pode ser mais que o dobro quando um “alvo espesso” é irradiado com prótons de 12 MeV de energia, em comparação com dêuterons de energia equivalente. Diz-se que um alvo é espesso quando o número de núcleos presentes é suficiente para diminuir a energia das partículas do feixe incidente, abaixo dos valores de limiar de reação. Visto que as duas reações produzem o mesmo radioisótopo, o FS será o mesmo, pois só depende da constante de decaimento, assumindo que a mesma corrente de feixe (I) seja empregada para as duas partículas. Tendo selecionado a rota de produção e a energia, o próximo passo é examinar as formas químicas e físicas tanto do alvo quanto do produto. O material alvo mais conveniente para produções de ^{18}F na forma de fluoreto, é a água enriquecida em ^{18}O . Neste caso, o fluoreto é produzido diretamente como o íon fluoreto adsorvido na água, que pode ser extraído do alvo por meio de uma coluna de troca iônica. Obviamente, se a forma química desejada for o flúor (F_2) e não o fluoreto, então a abordagem deverá ser completamente diferente.

Figura 3.5. Função de excitação para a reação $^{\text{nat}}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$. O $^{\text{nat}}\text{Ne}$ apresenta a seguinte composição isotópica: ^{20}Ne , 90,5%; ^{21}Ne , 0,3%; ^{22}Ne , 9,2%.

3.6. CONCLUSÕES

A produção de radioisótopos usando aceleradores de partículas, é um processo complicado, mas a compreensão dos processos fundamentais envolvidos nestas reações podem fazer a diferença na escolha da rota mais adequada de produção. A cinemática das reações nucleares que acontecem quando um determinado alvo é irradiado com um feixe muito energético de partículas aceleradas pode determinar qual radioisótopo vai ser produzido em maior escala em detrimento de outros, o que por seu lado vai determinar o rendimento e a utilidade do isótopo produzido. Os tempos de irradiação dependem fortemente dos tempos de meia-vida dos isótopos desejados e também das meias-vidas dos isótopos contaminantes. Todos estes fatores, em maior ou menor grau, devem ser levados em consideração no projeto e no gerenciamento dos processos de produção de radioisótopos²⁹.

4. TECNOLOGIA DE ALVOS

4.1. INTRODUÇÃO

Literalmente falando, existem mais de uma centena de radioisótopos que podem ser produzidos em aceleradores de partículas. O ciclotron tem sido a escolha mais frequente, embora o LINAC e outros tipos de aceleradores também possam se tornar mais comuns com o desenvolvimento de máquinas menores e mais confiáveis. Este capítulo será dedicado à tecnologia envolvida no projeto e construção de alvos e estações de irradiação para um pequeno subconjunto de radioisótopos que podem ser produzidos em aceleradores de partículas.

As metas da tecnologia de desenvolvimento de alvos está em colocar um certo material (sólido, líquido ou gasoso) na frente de um feixe de partículas altamente energéticas, mantê-lo desta forma durante o tempo necessário, e após o término da irradiação, remover de forma rápida e eficiente o radionuclídeo produzido. O projeto específico de cada alvo para irradiação em aceleradores deve permitir que estas metas sejam atingidas de maneira satisfatória. A menos que se tome os cuidados necessários na concepção e fabricação de alvos e estações de irradiação, a produção de qualquer radioisótopo poderá estar muito aquém do desejável, podendo até mesmo ser impossível a sua produção. Com o tempo, muitas instalações necessitarão aumentar o número de radioisótopos produzidos, ou então otimizar seus processos para melhorar o rendimento das produções dos radioisótopos já existentes. Se a meta de uma dada instalação é um aumento nas produções com objetivos puramente comerciais, então mudanças nos processos de produção ou desenvolvimento de novos alvos e novas estações de irradiação devem ser estudadas muito seriamente.

O objetivo deste capítulo será de explorar alguns dos problemas no projeto e construção de alvos, estações de irradiação para ciclotrons, e demonstrar, com exemplos práticos, como avaliar algumas soluções para numerosos problemas que podem ser

encontrados na tentativa de alcançar o projeto ideal de um alvo para irradiações em ciclotrons. Serão apresentadas aqui algumas equações e regras práticas que podem ser empregadas em projetos de alvos para ciclotrons, fornecendo alguma ideia sobre os processos que acontecem nos alvos.

Um dos maiores desafios para os envolvidos no projeto e construção de alvos e estações de irradiação para ciclotrons é que não existem dois aceleradores ciclotrons iguais, mesmo que o fabricante seja o mesmo. O projeto de um alvo para um determinado ciclotron pode não ser adequado para outro ciclotron. Além das características de projeto mecânico, da energia e a corrente do feixe, também há a forma espacial do feixe: seu tamanho e perfil são as variáveis mais importantes que devem ser levadas em consideração. Um perfil de feixe descontrolado ou instável pode resultar em uma produção de radioisótopos nada confiável. Se um feixe de partículas não pode ser controlado, então mudanças devem ser incorporadas ao alvo a fim de obter os rendimentos previstos. Há também diferenças significativas nas características dos feixes entre um ciclotron de íons positivos e de íons negativos. Ciclotrons de íons negativos, em geral, possuem um perfil de feixe mais uniforme incidente sobre os alvos. Isto é resultado direto do método de extração das partículas através de uma folha de carbono que espalhará e, portanto, tenderá a eliminar a formação de pontos de concentração de partículas no feixe^{30,31,32}. Magnetos de focalização e direcionamento do feixe colocados ao longo das linhas de transporte de feixe, caso existam, podem alterar o perfil do feixe tornando-o mais homogêneo. Ciclotrons de íons positivos também podem ter um perfil de feixe uniforme, ou o perfil pode ser muito concentrado em alguns pontos, dependendo das características de extração e concentração por ímãs utilizados no transporte do feixe. Em geral, o processo de extração de íons positivos tende a criar área de alta intensidade no feixe. Os ciclotrons mais modernos, disponíveis comercialmente para produções rotineiras de isótopos radioativos que serão empregados na medicina nuclear em tomografias PET e PET/CT, são todos ciclotrons de íons negativos, devido à sua confiabilidade, e praticamente todos eles possuem seus alvos e estações de irradiação montados diretamente no acelerador, não havendo portanto a necessidade de lentes magnéticas para focalização ou direcionamento do feixe, o que de certa forma alteraria o perfil espacial do feixe.

Outros fatores que são importantes para efetiva produção de radioisótopos são, a disponibilidade de pelo menos um feixe interno ao acelerador e a possibilidade de irradiação em vários alvos simultaneamente. Alvos internos foram desenvolvidos primeiramente porque a eficiência de extração nos ciclotrons mais antigos era muito baixa.

A eficiência de extração de um ciclotron é definida como a razão entre a corrente extraída e a corrente circulante antes da extração. Nos velhos ciclotrons de íons positivos, a maior parte do feixe se perdia no interior do tanque de aceleração (uma eficiência de extração de 10% era aceitável, ao passo que os modernos ciclotrons de íons positivos são capazes de extrair 60% do feixe). O uso de ciclotrons de íons negativos e o grande avanço na eficiência de extração dos modernos ciclotrons de íons positivos tem reduzido a necessidade de alvos internos, mas estes ainda são muito comuns, visto que são confiáveis e de fácil montagem e operação. Alvos internos são usualmente montados de forma que o feixe tenha uma incidência rasante sobre sua superfície, permitindo que o calor gerado no alvo seja dispersado sobre uma área maior. Os ciclotrons de íons negativos permitem a irradiação de dois ou mais alvos simultaneamente, mas isto não é normalmente possível com ciclotrons de íons positivos, a menos que os aceleradores sejam do tipo tandem e montados um seguido do outro ao longo da linha de feixe.

4.2. TIPOS DE ALVOS E PORTA-ALVOS

Para produções de radioisótopos, o material do alvo pode ser sólido, líquido ou gasoso. As estações de irradiação são, conseqüentemente projetadas para acomodar o material a ser irradiado (o alvo) de acordo com seu estado físico e o estado físico dos produtos resultantes. O projeto das estações de irradiação também dependem se serão montados dentro do ciclotron (alvo interno) ou fora do acelerador (alvo externo).

4.2.1. ALVOS INTERNOS

Os alvos internos foram os primeiros a serem usados em ciclotrons para

irradiações e produções de radioisótopos. A verdadeira vantagem destes alvos até os dias de hoje é que o alvo pode ser montado exatamente em um ponto onde intercepta tangencialmente o feixe e, portanto, dissipa com eficiência a potência térmica depositada pelo feixe sobre uma área maior, com isto, uma corrente de feixe mais intensa pode ser direcionada ao alvo. Um diagrama esquemático de um alvo interno é mostrado na figura 4.1.

Figura 4.1. Esquema de um alvo interno, mostrando o alvo depositado sobre uma base para resfriamento.

Este tipo de alvo interno foi largamente empregado para produções de radioisótopos não voláteis como ^{201}Tl via ^{203}Tl e ^{67}Ga via ^{68}Zn . Todos estes alvos são sólidos, na forma de uma fina camada eletrodepositada sobre uma base metálica, geralmente de cobre, cobre niquelado ou níquel, o que facilita a troca de calor entre o sistema alvo-base e o líquido de refrigeração. Alvos internos que empregam líquidos, gases ou mesmo algum tipo de material em pó já foram desenvolvidos e também foram empregados nas produções de ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O e ^{18}F , além de ^{123}I via ^{124}Xe .

A figura 4.2 mostra um alvo sólido que pode ser usado tanto internamente quanto externamente, para produções de radioisótopos em medicina nuclear. Este alvo em particular é um alvo de ^{68}Zn que é usado para produzir ^{67}Ga . A base é uma placa de cobre OFHC recoberta por uma camada de níquel. O alvo propriamente dito é a camada branca e opaca no centro da base. O zinco é eletrodepositado sobre a superfície niquelada da base e então é dissolvida por reagentes químicos após a irradiação. A base pode ser reutilizada

inúmeras vezes até que tenha que ser substituída.

Figura 4.2. Alvo de ^{68}Zn usado para produzir ^{67}Ga .

4.2.2. ALVOS EXTERNOS

Atualmente existe uma variedade muito grande de alvos e estações de irradiação externos que podem ser usados para irradiações de sólidos, líquidos e gases. É impraticável apresentar uma descrição completa de cada um destes vários tipos de alvos.

4.2.3. ALVOS SÓLIDOS

Devido a alta densidade dos sólidos, comparada com líquidos e gases, o caminho percorrido pelas partículas no interior dos alvos sólidos é muito mais curto. O sólido pode estar na forma de uma folha ou de pó. Se o sólido possui uma boa condutividade térmica, então o feixe pode ser direcionado perpendicularmente à superfície. Um típico alvo sólido para pós ou sólidos de alta condutividade térmica é mostrado na figura 4.3.

Se o sólido não possui uma boa condutividade térmica, ou quando altas correntes de feixe são usadas, é comum a montagem do alvo de forma que a incidência do feixe se faça em um ângulo pequeno, entre 5° e 10° tipicamente, como mostra a figura 4.1. Com isto, a área de incidência do feixe fica maior, como mostrado na equação (4.1), aumentando com isto a dissipação de calor da superfície do alvo, evitando a sua destruição.

$$A_i = \frac{A_f}{\sin(\theta)} \quad (4.1)$$

onde A_i é a área irradiada; A_f é a área do feixe e θ é o ângulo de inclinação do alvo em relação à direção de propagação do feixe. Como este ângulo é pequeno, $\sin(\theta)$ será tão pequeno ou mais, de forma que a área irradiada será maior do que a área do feixe por um fator $1/\sin(\theta)$.

Figura 4.3. Alvo sólido para irradiação de pós com baixa corrente de feixe ou sólidos de alta condutividade térmica.

4.2.4. ALVOS LÍQUIDOS

Exemplos de alvos externos para irradiação de líquidos e gases são mostrados na figura 4.4 onde aparecem em cortes, um alvo típico para irradiação de H_2^{18}O

para produção de ^{18}F e um alvo para irradiação de ^{124}Xe para produção de ^{123}I .

Figura 4.4. (a) alvo para irradiação de H_2^{18}O , (b) alvo para irradiação de ^{124}Xe .

No caso de líquidos, os alvos tem dimensões similares aos dos alvos sólidos, visto que o material alvo ocupa um volume específico exceto para líquidos voláteis. A diferença está na forma como o alvo líquido é carregado e descarregado, estando o porta alvo já acoplado ao acelerador. A figura 4.5 mostra uma fotografia dos porta-alvos de água enriquecida, feita na sala de irradiações de alvos líquidos e gasosos da Diretoria de Radiofarmácia (DIRF) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (CNEN/IPEN-SP). Nesta figura, em primeiro plano, é mostrado o alvo de pequeno volume de H_2^{18}O (2,4 ml) e mais ao fundo o alvo de grande volume (5 ml), ambos usados para produções de ^{18}F . A figura 4.4(a) mostra um corte destes alvos.

Figura 4.5. Alvos externos de H_2^{18}O para produções de ^{18}F no IPEN.

4.2.5. ALVOS GASOSOS

Alvos gasosos são muito utilizados em produções de radioisótopos. Em geral são feitos em formato cilíndrico para poder armazenar o gás sob pressão. Separando o alvo do acelerador, existe um conjunto de janelas metálicas muito finas, refrigeradas por um circuito fechado de hélio comprimido, que deixa passar o feixe sem muitas perdas ou espalhamentos. O principal problema com alvos gasosos é a retirada de calor do gás, uma vez que a maioria dos gases possuem baixa condutividade térmica, por este motivo, os alvos gasosos apresentam uma câmara de irradiação relativamente grande para que uma grande quantidade de gás possa ser inserida e o calor possa ser trocado de forma eficiente. Em geral os alvos gasosos são muito maiores do que os alvos sólidos ou líquidos.

A figura 4.6 traz uma fotografia do alvo de ^{124}Xe desenvolvido na Diretoria de Radiofármacos (DIRF) do IPEN para produzir ^{123}I ultrapuro, e a figura 4.7 mostra uma visão esquemática dos principais elementos internos de um alvo destes.

O desenvolvimento de alvos para irradiação em ciclotrons é um campo multidisciplinar. Física, Química e Engenharia tem papéis importantes em todos os processos, desde o projeto, passando pela construção, até os testes finais de aprovação. Em

quase todos os casos, é necessário uma série de compromissos de projeto, pois muitas vezes a melhor solução para um dado problema pode acarretar em uma restrição muito maior em outro aspecto do alvo.

Figura 4.6. Alvo de ^{124}Xe desenvolvido no IPEN para produção de ^{123}I ultra-puro.

Figura 4.7. Esquema de um alvo gasoso, mostrando a câmara para o gás que é feita em formato cônico para minimizar os efeitos de múltiplos espalhamentos.

4.3. FÍSICA APLICADA NA TECNOLOGIA DE ALVOS

A maior preocupação nos projetos de alvos para irradiações em ciclotrons é a geração e dissipação de calor. Um sistema de refrigeração eficiente não só assegura que o alvo permanecerá íntegro durante toda a irradiação, mas também pode permitir que o alvo seja irradiado com correntes de feixe mais elevadas, permitindo maiores produções de radioisótopos, ou mais irradiações em um mesmo intervalo de tempo. Em relação aos fatores termodinâmicos, deve-se considerar:

- ◆ As interações de partículas carregadas com a matéria;
- ◆ O poder de freamento e o alcance;
- ◆ A energia dissipada;
- ◆ Múltiplos espalhamentos em pequenos ângulos.

Cada um destes aspectos será discutido a seguir.

4.3.1. INTERAÇÕES DE PARTÍCULAS CARREGADAS COM A MATÉRIA

Quando uma partícula carregada se move dentro de um determinado meio, dependendo da energia cinética e da carga desta partícula, pode ocorrer ionização do meio, espalhamentos diversos e outros tipos de perdas de energia. Há quatro modos principais de interação envolvidos.

No primeiro modo de interação, as partículas sofrem colisões inelásticas com elétrons dos átomos do meio circundante. Neste caso, os elétrons são promovidos para níveis de energia mais elevados (excitação) ou ejetados do átomo (ionização)³³. Se ocorre a ionização, então os íons e os elétrons irão se recombinar em algum momento para formar átomos ou moléculas neutros em estados excitados. Em ambos os casos, os átomos ou moléculas excitados devem transferir o excesso de energia para o meio circundante. Esta

forma de transferência de energia de partículas carregadas para o meio é a principal fonte de calor nos alvos e estações de irradiação.

No segundo modo de interação, as partículas sofrem colisões inelásticas com os núcleos dos átomos que compõem o material do alvo. Neste caso, as partículas carregadas são espalhadas em função do parâmetro de impacto e das cargas elétricas envolvidas. Em algumas destas deflexões, um *quantum* de energia é perdido na forma de radiação eletromagnética (bremsstrahlung) e uma correspondente quantidade de energia cinética é perdida pelas partículas que participam da colisão. A intensidade total da radiação eletromagnética varia inversamente com o quadrado da massa da partícula carregada, tanto que não é importante para prótons ou partículas de maior massa, como o dêuteron por exemplo.

No terceiro modo de interação, as partículas sofrem colisões elásticas com os núcleos dos átomos de que é feito o material do alvo. Em uma colisão elástica, a partícula incidente é espalhada mas nem emite radiação nem resulta em excitação dos núcleos dos átomos do alvo. A única perda de energia é devido à conservação do *momentum* e ao espalhamento da partícula. Este processo é muito comum para elétrons, mas muito pouco provável para partículas de maior carga elétrica e maior massa.

No último modo de interação, as partículas sofrem colisões elásticas com os elétrons dos átomos do alvo. Este processo usualmente ocorre apenas para baixas energias quando as partículas carregadas não transferem energia suficiente aos elétrons atômicos, não havendo nem excitação nem ionização.

As partículas carregadas perdem energia cinética como resultado destes quatro processos descritos, uma vez que se movem através do alvo. Em energias típicas para produção de radioisótopos, uma partícula vai sofrer cerca de 10^6 colisões com elétrons e núcleos antes de atingir o repouso. É óbvio que os tipos de colisões sofridas e o caminho individual de cada partícula não podem ser previstos por nenhum meio. Entretanto, desde que as probabilidades possam ser calculadas, pois o número de partículas é extremamente grande, o comportamento global do feixe de partículas pode ser previsto com alguma

confiabilidade.

4.3.2. ALCANCE E PODER DE FREAMENTO

A diminuição de velocidade (perda de energia cinética) de uma partícula carregada ao atravessar um meio material, por qualquer um dos quatro meios descritos anteriormente, é chamada de Poder de Freamento do meio, definido como segue:

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} \quad (4.2)$$

onde E é a energia da partícula (MeV) e x é a distância percorrida (cm).

O cálculo exato de $S(E)$ é muito complexo, mas uma aproximação razoável é dada pela seguinte expressão³³:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi z^2 e^4 N Z}{m_0 v^2 A} \ln\left(\frac{2m_0 v^2}{W}\right) \quad (4.3)$$

onde z e Z são os números atômicos da partícula incidente e do material alvo, respectivamente; e é carga elétrica elementar (esu); m_0 é a massa de repouso do elétron (MeV); A é a massa atômica dos átomos do alvo (u.m.a.); v é a velocidade da partícula (cm/s); N é o número de Avogadro; e W é o potencial de ionização efetivo dos átomos do alvo (eV).

Supondo que a partícula incidente é muito maior do que os elétrons dos átomos do alvo, o que na maioria dos casos práticos é uma verdade, a máxima energia transferida será $2m_0 v^2$. Portanto, a expressão (4.3) pode ser reduzida como segue:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{144 Z z^2}{A E} \ln\left(\frac{2195 E}{W}\right) \quad (4.4)$$

Se o potencial de ionização efetivo é conhecido, então poderá ser usado sem problemas. Existem tabelas³⁴ de Potencial de Ionização Efetivo para uma variedade muito grande de materiais. Se o potencial de ionização efetivo não é conhecido, então seus valores poderão ser aproximados de acordo com as relações abaixo:

$$\begin{aligned} W &= 13Z ; \text{ para } Z \leq 13 \\ W &= 9,76 Z + 58,8 Z^{-0,019} ; \text{ para } Z > 13 \end{aligned} \quad (4.5)$$

O alcance R de uma partícula carregada através de um meio qualquer simplesmente é a integral da equação de perda de energia [equação (4.2)].

$$R = \int_0^{E_{max}} \frac{1}{S(E)} dE \quad (4.6)$$

onde $S(E)$ é o poder de freamento para a energia E .

Se a equação simplificada de perda de energia for usada, então a equação para o alcance R pode ser integrada numericamente em intervalos de energia de 0,1 MeV como segue:

$$R = \sum_0^{E_{max}} \frac{1}{S(E)} \Delta E \quad (4.7)$$

com a expressão (4.4) fica:

$$R = \sum_0^{E_{max}} \frac{A E}{144 z^2 Z \ln\left(\frac{2195 E}{W}\right)} \Delta E \quad (4.8)$$

Esta expressão pode ser programada em um computador pessoal, para fornecer uma aproximação razoável do alcance de uma partícula no interior de um determinado material. Usando esta expressão e um intervalo de integração de 0,1 MeV, o alcance de prótons de 20 MeV de energia cinética no interior do alumínio é de 0,588 g/cm².

Consultando tabelas mais precisas³⁵, encontra-se o valor de 0,5740 g/cm², uma concordância da ordem de 2%. A concordância é melhor para energias mais baixas e um pouco pior para energias mais altas, embora seja sempre melhor do que 2% para energias típicas encontradas nos aceleradores ciclotrons voltados para produções de radioisótopos³⁶. A tabela 4.1 mostra valores do alcance de prótons no alumínio para vários valores de energia, calculados por meio de quatro métodos diferentes.

Tabela 4.1. Alcance (g/cm²) de prótons em alumínio, calculado por diferentes métodos para diversas energias.

Energia (MeV)	Alcance (equação (4.8))	Alcance (SRIM)	Alcance ³⁴	Alcance ³⁵
15	0,3477	0,3431	0,3430	0,3448
14	0,3077	0,3026	0,3038	0,3053
13	0,2699	0,2662	0,2668	0,2679
12	0,2344	0,2313	0,2319	0,2327
11	0,2011	0,1987	0,1992	0,1998
10	0,1702	0,1681	0,1687	0,1691
9	0,1416	0,1401	0,1405	0,1407
8	0,1155	0,1142	0,1146	0,1147
7	0,0917	0,0907	0,0910	0,0910
6	0,0705	0,0696	0,0699	0,0698
5	0,0517	0,0511	0,0513	0,0511
4	0,0357	0,0350	0,0352	0,0351
3	0,0223	0,0217	0,0219	0,0218
2	0,0118	0,0112	0,0114	0,0113
1	0,0044	0,0039	0,0040	0,0039

Existem ainda duas outras considerações para o cálculo do alcance de partículas na tecnologia de alvos:

- (1) O alcance de outras partículas diferentes de prótons;
- (2) O alcance em materiais compostos feitos de vários elementos diferentes.

No caso de partículas diferentes de prótons, o poder de freamento e

consequentemente o alcance, podem ser calculados em relação ao poder de freamento de prótons pelas relações mostradas em (4.9).

Estas relações são válidas para energias acima da energia de ligação dos íons, que no caso do ^4He é de aproximadamente 1,7 MeV. De forma similar, o poder de freamento de uma partícula em um composto químico, liga ou composto é o poder de freamento da partícula em cada elemento do composto multiplicado pela fração do elemento no composto.

$$\begin{aligned}
 & \text{(a) Dêuterons: } S_d(E) = S_p(E/2); \\
 & \text{(b) Trítio: } S_t(E) = S_p(E/3); \\
 & \text{(c) Hélio-3: } S_{\text{He-3}}(E) = 4S_p(E/3); \\
 & \text{(d) Hélio-4: } S_{\text{He-4}}(E) = 4S_p(E/4)
 \end{aligned}
 \tag{4.9}$$

4.3.3. DISTRIBUIÇÃO DE ENERGIA NO FEIXE

Partículas carregadas de mesma energia cinética, não atravessam a matéria da mesma forma. Os alcances de um feixe de partículas inicialmente monoenergético tem uma distribuição de alcance centrada em torno de um alcance médio, próprio da natureza estatística dos processos de colisões atômicas. Este fenômeno está ligado à dissipação de energia e tem importante aplicação na tecnologia de alvos para irradiações em ciclotrons, na determinação do rendimento esperado de um alvo que não é capaz de frear todas as partículas carregadas que incidem sobre ele. Nesta situação, uma folha metálica é colocada na frente do feixe, antes de atingir o alvo, para degradar a energia do feixe o que pode ter um impacto significativo sobre o rendimento final do alvo, mesmo que a energia calculada seja a mesma de um feixe que penetra o alvo sem passar pelo degradador.

Como exemplo, a figura 4.8 mostra a distribuição de energias resultante da degradação de feixes com mesmo número de partículas de 200 para 15 MeV, de 70 para 15 MeV, e de 30 para 15 MeV, respectivamente.

Figura 4.8. Distribuição de energia do feixe quando prótons são degradados de uma energia inicial de 200, 70 e 30 MeV para uma energia final de 15 MeV.

É evidente que se a distribuição de energia inicial de 30 MeV tem um alargamento de 2 MeV, então a distribuição de energia de 200 MeV terá um alargamento de 10 MeV. Um feixe com energia inicial E_0 atravessando um meio absorvedor perderá energia de acordo com a equação de poder de freamento $S(E)$. A distância média que as partículas viajam até atingir a energia E_1 é dada pela seguinte relação:

$$\bar{x} = \int_{E_1}^{E_0} \frac{1}{S(E)} dE \quad (4.10)$$

A distribuição de distâncias percorridas pelas partículas individuais é aproximadamente Gaussiana. Outra forma de entender este fato, é que em um determinado ponto do meio absorvedor, as partículas tem uma certa distribuição de energia. O desvio padrão desta função distribuição de energia pode ser aproximada com bastante precisão pela seguinte relação:

$$\sigma = 0.395 z \left(\frac{Z}{A} x \right)^{1/2} \quad (4.11)$$

onde z e Z são os números atômicos das partículas do feixe e dos átomos do meio

absorvedor, respectivamente; A é a massa atômica do meio (u.m.a.); e x é o alcance da partícula (g/cm^2).

A função distribuição de energia é assumida ser Gaussiana e o desvio padrão σ está em unidades de MeV. Esta expressão não é válida para alcances muito curtos (para perdas de energia menores do que 1%) ou para alcances muito longos onde a energia da partícula é próxima a energia térmica (feixe é completamente freado).

4.3.4. MÚLTIPLOS ESPALHAMENTOS

Quando as partículas carregadas de um feixe atravessam um meio absorvedor, elas também sofrem espalhamentos em pequenos ângulos. Este tipo de espalhamento tem uma importante implicação no projeto de alvos para irradiação em ciclotrons, porque qualquer degradador ou material do alvo que estejam no caminho do feixe irão provocar seu alargamento. A forma geométrica do alvo deve levar em conta o aumento do diâmetro do feixe afim de maximizar o rendimento da irradiação. Isto é especialmente importante no projeto de alvos gasosos, onde o meio usualmente tem densidade menor do que líquidos ou sólidos, e portanto deve ser mais longo, de forma que os efeitos de espalhamento em pequenos ângulos se tornam consideráveis.

Em análises normais de espalhamento angular, grandes ângulos de espalhamento são desprezados, visto que a fração de partículas que são espalhadas desta forma é bastante pequena e, portanto, não são de grande importância para o rendimento do alvo. O desvio padrão para espalhamentos em grandes ângulos é dado pela seguinte relação³²:

$$\sigma^2 = Q G \quad (4.12)$$

onde os termos Q e G são dados por:

$$Q = \frac{4\pi\rho_a s (e^2 Z z)^2}{(p v)^2} \quad (4.13)$$

$$G = 0,5 \ln\left(\frac{E a_0}{z Z^{4/3} e^2}\right)$$

onde z e Z são os números atômicos das partículas do feixe e dos átomos do alvo, respectivamente; ρ_a é a densidade volumétrica de átomos no alvo (átomos/cm³); s é a espessura do alvo; e é a carga eletrônica fundamental (seu); p é o *momentum* da partícula (g.cm/s); v é a velocidade da partícula (cm/s); E é a energia cinética da partícula; e a_0 é o raio nuclear.

Combinadas e simplificadas, estas duas relações resultam em:

$$\sigma^2 = 0,0536 \left[\frac{\rho_s Z^2 z^2 \ln\left(\frac{3,67 \times 10^4 E}{z Z^{4/3}}\right)}{A E^2} \right] \quad (4.14)$$

onde ρ_s é a densidade superficial do alvo (g/cm²); E é a energia cinética das partículas incidentes; A é a massa atômica dos átomos do alvo; z e Z são os números atômicos das partículas incidentes e dos átomos do alvo, respectivamente.

Esta aproximação é correta se a energia usada for a energia média do feixe no meio absorvedor. A distribuição angular pode também ser obtida usando o programa SRIM³⁷.

A distribuição inicial do feixe pode ser aproximada, com qualquer grau de resolução, para uma função mais precisa e complexa determinada por um monitor de perfil de feixe. Na prática, a forma geométrica do feixe pode ser aproximada pela divisão do feixe em pequenos segmentos (tantos quantos forem necessários para uma maior precisão) e então cada um destes pequenos segmentos multiplicado por uma função Gaussiana com um desvio padrão (σ) derivado da equação. Cada segmento é sobreposto um ao outro no espaço, e somado. A função após o espalhamento é então normalizada à corrente de feixe

conhecida. Isto dá uma boa aproximação para o perfil do feixe. A relação é menos precisa quando o caminho percorrido pelas partículas é muito longo e a energia na saída do meio é muito próxima de zero. Nesta situação, uma aproximação mais precisa deve ser conseguida pela divisão total do alcance da partícula em pequenos segmentos. A distribuição do feixe no primeiro segmento é então calculada, e a saída deste segmento usada como entrada no próximo segmento.

4.4. QUÍMICA NA TECNOLOGIA DE ALVOS

As reações químicas que ocorrem no interior dos alvos são a fonte dos produtos químicos produzidos durante as irradiações. As reações dos átomos com núcleos altamente excitados com as vizinhanças durante o processo de perda de energia (de-excitação) são fatores determinantes para a formação de moléculas radiomarcadas. Muitas das reações químicas que acontecem foram primeiro estudadas usando a “Química do Átomo Quente”. Átomo Quente é um átomo formado nucleogenicamente com uma grande quantidade de energia em excesso. No entanto, as condições reais que ocorrem no interior de um alvo para produções de radioisótopos são bastante diferentes daquelas encontradas nos estudos empregando os experimentos típicos com átomos quentes usando alvos gasosos. No caso dos experimentos com átomos quentes, a corrente de feixe é usualmente menor do que $1\ \mu A$ e o gás está a uma pressão muito menor do que $1\ atm$ ($1,01 \times 10^5\ Pa$). Em uma produção normal com alvos gasosos, a corrente de feixe pode ser de 20 ou 30 μA (ou mais alta, com os alvos mais modernos) e pressões da ordem de 70 atm ($7,09 \times 10^6\ Pa$). Entretanto, em muitos casos, os resultados encontrados nos estudos com átomos quentes tem sido muito satisfatórios para explicar a distribuição de produtos na produção em alvos gasosos.

4.4.1. INTERAÇÕES QUÍMICAS NO ALVO

O comportamento da matéria no interior de um alvo depende do estado físico do material que está sendo irradiado. Em um alvo gasoso, o gás é altamente ionizado

e reações altamente endotérmicas entre íons e moléculas estão ocorrendo. A figura 4.9 mostra o interior de um alvo gasoso durante uma irradiação.

Quase todas as espécies químicas podem ser formadas nesse plasma ou “sopa de íons”. Quando outros gases estão presentes, sejam como aditivos ou como contaminantes, a situação se torna por demais complexa. Na maior parte dos casos, a distribuição do produto final será determinada pela termodinâmica da situação, uma vez que há energia suficiente para superar as barreiras de ativação cinética que impõe restrições sobre a distribuição dos produtos em temperaturas mais baixas. Em um alvo líquido, o material pode estar na forma de um líquido ou um vapor, dependendo da intensidade do feixe e da temperatura. O material do alvo pode ferver de forma intermitente, como já foi verificado em alvos de água para produção de ^{18}F ^{38,39}. Exemplos de água fervente e moléculas excitadas de água emitindo luz durante uma irradiação são mostrados na figura 4.10.

Figura 4.9. Interior de um alvo gasoso durante uma irradiação, mostrando o gás altamente ionizado.

Em um alvo sólido, o sólido pode liquefazer ou sublimar e mudar completamente o seu estado físico. A forma química final do radionuclídeo de um alvo gasoso depende dos gases que estão presentes na mistura durante a irradiação. Um exemplo é a produção de $^{11}\text{CO}_2$ a partir da reação $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ em um alvo de nitrogênio gasoso puro. Nitrogênio obtido comercialmente de qualquer fornecedor contém pelo menos 0,5 ppm de oxigênio como impureza.

Figura 4.10. Emissão de luz pela água ionizada e em ebulição durante irradiação.

Esta quantidade de oxigênio em geral é suficiente para converter todas as impurezas de hidrocarbonetos em CO_2 , com O_2 suficiente para converter todos os outros ^{11}C produzidos no alvo para dióxido de carbono, antes que estes átomos sejam termalizados pelas colisões com as paredes do alvo. Caso outras formas químicas contendo carbono sejam desejadas, então outro gás deve ser adicionado em grandes quantidades, uma vez que a reação com o oxigênio é termodinamicamente mais favorável de acontecer. Se o produto desejado é o metano, então cerca de 5% de H_2 deve ser adicionado ao gás, a fim de garantir que o metano seja produto final^{40,41}. A razão pela qual o dióxido de carbono não é o produto final é que o hidrogênio reage com o oxigênio formando água e, portanto, não ficando disponível para formar o dióxido. Certamente, há produção de cianeto de hidrogênio neste mesmo alvo, mas a energia térmica é alta o suficiente para que este produto seja rapidamente convertido a um composto termodinamicamente mais estável, como o metano ou a amônia. Outra etapa do processo deve ter lugar fora do alvo na conversão do metano ou da amônia de volta a cianeto de hidrogênio, que de fato é o produto desejado. A estabilidade termodinâmica das moléculas também são fatores determinantes na distribuição do produto final. A grande quantidade de energia presente no alvo durante a irradiação faz a cinética das reações menos importante do que a termodinâmica, desde que a maioria das barreiras sejam facilmente transpostas.

Em meados da década de 1980 foram desenvolvidos alvos de fase mista, para alterar a forma química do radionuclídeo. Como exemplo pode-se citar alvos de ^{13}C

em pó dissolvido em água desenvolvido pela CTI, Inc. (Knoxville, TN)⁴². Nestes alvos, a suspensão de ^{13}C na água é irradiada em ciclotron resultando em $^{13}\text{NH}_3$. Um esquema deste tipo de alvo é mostrado na figura 4.11.

Figura 4.11. Alvo de ^{13}C dissolvido em água para produção de $^{13}\text{NH}_3$, desenvolvido pela CTI, Inc.

Este desenvolvimento é interessante pois os alvos de água tem sido usados há muito tempo para produzir ^{13}N , mas as formas químicas eram de nitratos e nitritos, que eram então convertidos para amônia pela redução com liga de Devarda como base ou com TiCl_3 . O pó de ^{13}C produz ^{13}N tanto pela reação nuclear $^{13}\text{C}(\text{p},\text{n})^{13}\text{N}$, quanto pela reação $^{16}\text{O}(\text{p},\alpha)^{13}\text{N}$. Há alguma dúvida se muito do ^{13}N provém do ^{13}C ou se ele permanece fortemente ligado à matriz. O fato que o produto é $^{13}\text{NH}_3$ sugere que o pó de carbono é removido ou pelo menos ligado ao oxigênio dissolvido na água de forma que não possa reagir com os átomos de nitrogênio produzidos. Outros exemplos de aditivos empregados para produzir amônia diretamente no alvo envolve a adição de etanol ao alvo de água. Poucas partes por milhar de etanol mudará a forma química do ^{13}N de nitratos e nitritos para amônia. A natureza exata dos efeitos destes aditivos ainda está sob investigação. Este tipo de química intra-alvo oferece oportunidades de alteração das formas químicas dos radioisótopos de várias maneiras, dependendo das propriedades dos materiais dos alvos e dos aditivos⁴³.

4.4.2. ATIVIDADE ESPECÍFICA (AE) E CONTAMINANTES

A *AE* de um radionuclídeo é definida como a quantidade de radionuclídeo dividida pela massa total do composto. Como exemplo, se a atividade de uma amostra de $^{11}\text{CO}_2$ for de 200 mCi e a quantidade de massa for de $0,1 \mu\text{mol}$, então a *AE* desta amostra será de $2 \text{ Ci}/\mu\text{mol}$. Há, evidentemente, um limite máximo, que ocorre apenas quando átomos radioativos ou moléculas marcadas estão presentes. Uma lista de alguns radionuclídeos mais comuns em tomografias PET são mostrados na tabela 4.2 ⁴⁴.

Tabela 4.2. Radionuclídeos mais comuns em tomografias PET e suas características de decaimento.

Nuclídeo	Meia-vida (min)	Dcaimento	Energia Máxima (MeV)	Energia Média (MeV)	Alcance Máximo ^a (mm)	<i>AE</i> Máxima (Teórica) (Ci/ μmol) ^b
^{11}C	20,4	100% β^+	0,96	0,386	4,1	9220
^{13}N	9,98	100% β^+	1,19	0,492	5,4	18900
^{15}O	2,03	100% β^+	1,7	0,735	8,0	91730
^{18}F	109,8	97% β^+	0,69	0,250	2,4	1710
^{62}Cu	9,74	99,7% β^+	2,93	1,314	14,3	19310
^{68}Ga	68,0	89% β^+	1,9	0,829	9,0	2766
^{124}I	6019,2	23,3% β^+	2,13	0,8	10,2	31

^a na água

^b 1 Ci = 37 GBq

A *AE* é um fator crítico para muitos tipos de agentes clínicos e moléculas marcadas para trabalhos biológicos. As moléculas marcadas usadas para estudos da química cerebral e atividades neuroreceptores são exemplos da necessidade de altas *AE* ou, mais corretamente, menor massa injetada nos pacientes. Poucos *nanomoles* de excesso de massa pode ter um efeito sobre a atividade dos neuroreceptores e, portanto, alterar as características aparentes do receptor quando comparado com aqueles observados com alta *AE* (baixa massa) de moléculas marcadas. A *AE* das moléculas marcadas deverá ser monitorada e, se a quantidade de massa for muito grande ou começar a crescer, então atitudes devem ser tomadas para remediar esta situação. As fontes transmissoras de massa no produto final podem ser, por exemplo, os produtos químicos usados na marcação das

moléculas, o material alvo, paredes do alvo ou as folhas e janelas.

A única maneira de determinar as fontes transmissoras de material para o produto final é medir a *AE* em cada etapa de processamento do alvo até a preparação final da molécula marcada. Os métodos para medir a *AE* do alvo irradiado dependerá do estado físico do material. Materiais gasosos podem também ser analisados por cromatografia, detectores de ionização por chama ou detectores de captura eletrônica. Líquidos também podem ser analisados por cromatografia de alta pressão ou cromatografia iônica, usando luz ultravioleta e detectores de condutividade, respectivamente. Alvos sólidos são os que apresentam as maiores dificuldades. Estes materiais podem, algumas vezes, serem analisados por técnicas de fluorescência de Raios-X ou espectrometria de massa.

A maior preocupação em tomografia PET é a *AE* do ^{11}C . O carbono pode vir das paredes do alvo durante a irradiação. A quantidade de carbono pode ser reduzida pela irradiação de uma mistura de gás inerte junto com o oxigênio do alvo. Se o alvo for mantido estanque e pressurizado, a quantidade de carbono transportado permanecerá baixa. A quantidade de atividade recuperada do alvo também será reduzida quando a *AE* for aumentada.

Portadores de fluoreto no alvo de água para produção de ^{18}F é outro exemplo. Aqui a *AE* é também limitada pela quantidade de portadores de fluoreto presentes na água enriquecida usada.

Tem sido mostrado que a quantidade de portadores de fluoreto não cresce nas irradiações prolongadas como no caso do ^{11}C . Isto sugere que o alvo não é uma fonte de portadores. Portadores de fluoretos podem ser adicionados através do sistema de manuseio da água, visto que as válvulas usadas na maioria destes sistemas contém juntas e anéis de vedação feitos de material polimérico, os quais são feitos com flúor em algumas de suas formulações. Isto torna muito difícil obter altas atividades específicas de ^{18}F sem tomar um extremo cuidado na escolha dos materiais utilizados no sistema de movimentação da água do alvo. Alguns dos materiais mais comuns e a quantidade de flúor covalente contido em cada um são listados na tabela 4.3.

Tabela 4.3. Flúor nos materiais mais comuns.

Material	Flúor (% do peso)
Teflon [®] (PTFE)	76
Kel-F [®]	49
Material de vedação em válvulas de agulha	50
Viton [®]	0,002
Polietileno	<0,0004

4.5. TEMPERATURA DO ALVO

A distribuição de temperatura no interior dos alvos afeta diretamente a distribuição dos produtos na irradiação. O efeito da temperatura sobre a redução da densidade já mencionado³⁹. Um mapa de temperaturas no interior de um alvo de argônio é mostrado na figura 4.12. Neste caso, o feixe é formado de prótons de 14,7 MeV de energia e corrente de feixe de 15 μ A, com um alcance maior do que o comprimento do alvo.

Como pode ser visto da figura 4.12, as temperaturas podem ser muito altas, e a maioria das barreiras cinéticas podem ser facilmente transpostas. A termodinâmica dos componentes particulares do sistema provavelmente podem determinar a forma química final do radioisótopo.

Valores das temperaturas no interior de alvos de água durante a irradiação já foram medidas e publicadas em diversos trabalhos^{38,45}. Sob condições normais de produção, a temperatura da água atingiu o ponto de ebulição e permaneceu neste ponto durante toda a irradiação. Quando o alvo é pressurizado, a temperatura da água aumenta até o ponto de ebulição para aquela pressão. Quando a água está fervendo, a produção do radioisótopo é menor do que se a água é mantida na forma líquida durante todo o tempo. Este resultado é baseado no pressuposto de que o alcance das partículas no alvo é similar ao tamanho do alvo. Para aumentar o rendimento enquanto a água está em ebulição, o alvo deve ser feito muito mais longo do que o comprimento do alcance dos prótons. Esta técnica tem sido usada em muitos alvos comerciais. Estas observações mostram que a redução da

densidade acontece até certa medida, em quase todos os alvos gasosos e líquidos, e os rendimentos podem ser aumentados compensando estes fatores.

Figura 4.12. Temperaturas (em °C) em seis regiões de um alvo de argônio com pressão interna de 675 kPa.

4.6. DANOS POR RADIAÇÃO

Outro problema na tecnologia de alvos para ciclotrons é a degradação de certos materiais quando expostos à campos de radiação de altas intensidades. Radiação γ ou β tem pouco efeito sobre metais, mas quebram ligações químicas e impedem a recombinação de compostos orgânicos. Isto é particularmente importante no caso de plásticos, alguns dos quais são bastante resistentes à radiação, enquanto outros degradam facilmente sob exposições mais prolongadas. Para um determinado fluxo de Raios- γ ou nêutrons, o grau de degradação observado depende do tipo de ligação química presente. A ligação química com a menor resistência a decomposição é a ligação covalente. Há consideráveis variações na intensidade das ligações covalentes presentes em diferentes plásticos e uma ampla variação em sua estabilidade sob radiação. As reações químicas mais comuns que ocorrem em compostos orgânicos durante as irradiações são a polimerização, oxidação, halogenação e mudanças isoméricas. Uma pequena lista dos materiais plásticos mais comuns usados em alvos para irradiações em ciclotrons e suas resistências à radiação é apresentada na tabela 4.4.

Tabela 4.4. Suscetibilidade dos materiais aos danos por radiação gama.

Material	Resistência à radiação	Nível de tolerância (kGy)
Teflon [®]	Pouca (torna-se pó)	5
Polietileno [®]	Bom	1000
Polipropileno [®]	Razoável	50
PEEK [®] (polietil-éter-cetona)	Excelente	10000
Nylon [®] (alifático ou amorfo)	Razoável	50
Policarbonato	Bom	1000
Poliestireno	Excelente	10000

4.7. ENGENHARIA DE ALVOS

4.7.1. TRANSFERÊNCIA DE CALOR

Como já mencionado anteriormente, a energia perdida quando partículas carregadas passam através de algum meio material é dissipada principalmente na forma de calor. Um dos problemas mais desafiadores no projeto de alvos para irradiação em ciclotrons é encontrar meios capazes de remover parte deste calor durante as irradiações. O calor gerado nos alvos, muitas vezes são prejudiciais aos objetivos propostos. Uma parte destes problemas, tais como a redução de densidade, as reações químicas que ocorrem nos materiais irradiados, e danos por radiação, já foi apresentada e discutida.

A escolha dos materiais para a construção do corpo do alvo, chamado porta-alvo, e as janelas de separação dos mesmos do tanque de aceleração ou das linhas de transporte de feixe, dependerão não apenas de sua dureza ou estabilidade química, mas também de suas propriedades térmicas. Nesta seção, serão explorados alguns dos princípios básicos da transferência de calor, relacionados aos alvos para irradiação em aceleradores de partículas.

Da Primeira Lei da termodinâmica, pode-se escrever:

$$U = Q - \tau \quad (4.15)$$

onde U é a energia interna; Q é o calor gerado; e τ é o trabalho realizado.

Qualquer modo de transferência de calor envolve um gradiente de temperatura como força motriz, e quanto maior for este gradiente, mais rápida será a transferência de calor. Existem três formas do calor ser transferido de uma região para outra, inclusive no interior de alvos. Estes modos são a radiação, a condução e a convecção.

4.7.2. TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR RADIAÇÃO

A perda de calor por radiação geralmente é menor, exceto para as janelas metálicas dos alvos ou materiais sólidos com baixa condutividade térmica quando altas correntes de feixe são usadas. Nestes casos, usualmente supõe-se que o calor emitido pela superfície é todo absorvido pela linha de feixe ou pelo próprio porta-alvo, e muito pouco retorna ao alvo. A perda de calor por radiação é a mais fácil de ser estimada. Se a radiação térmica emitida de um corpo for considerada como um gás de fótons, então é possível mostrar por argumentos termodinâmicos que a densidade de energia da radiação é dada por:

$$Q_{rad} = A \sigma T^4 \quad (4.16)$$

onde Q_{rad} é o calor emitido na forma de radiação (Watts); A é a área da superfície (cm^2); σ é a constante de Stefan-Boltzmann; e T é a temperatura absoluta (K).

A constante de Stefan-Boltzmann é igual a $5,66 \times 10^{-14} \text{ W/cm}^2 \cdot \text{K}^4$, e representa a quantidade de calor irradiada por um corpo negro para um reservatório infinito. No equilíbrio térmico, um corpo negro ideal tem o coeficiente de absorção e o coeficiente de emissão, ambos iguais a 1. Isto não é válido para objetos reais, mas os coeficientes de emissão (emissividade) e absorção (absorvidade) são usualmente iguais:

por este motivo, fala-se apenas na emissividade de um corpo.

Isto implica que o calor fornecido por um corpo na temperatura T_1 para o meio circundante na temperatura T_2 é:

$$Q_{rad} = A \beta \sigma (T_1 - T_2)^4 \quad (4.17)$$

Um aspecto muito importante da transferência de calor por radiação está na geometria do sistema. Quando um objeto é aquecido por meio de um feixe de partículas oriundo de um acelerador de partículas, a radiação é emitida em todas as direções, e apenas uma fração desta energia será realmente depositada sobre uma superfície de onde poderá ser removida ou absorvida. Esta fração é chamada de fator de forma F . O fator de forma é definido como a fração da energia térmica que deixa a superfície do objeto 1 e atinge a superfície de um objeto 2, e é inteiramente determinada por meio de considerações puramente geométricas. Em outras palavras, é a fração do objeto 2 visível para o objeto 1, e seu valor está entre 0 e 1, e é adimensional. Existem expressões matemáticas com as quais torna-se possível o cálculo dos fatores de forma, porém, o método mais usual é consultar uma das tabelas de fatores de forma existentes na literatura⁴⁶. Os valores do calor perdido por radiação por um metal com uma superfície aquecida de área $0,75 \text{ cm}^2$ (valor típico da área frontal de um feixe de partículas que atinge a janela metálica de um alvo) e emissividade de 0,5 (também um valor típico de folhas metálicas em altas temperaturas) são dados na tabela 4.5.

Desta tabela pode ser visto que a quantidade de calor eliminado por este processo não é significativo para temperaturas abaixo de 773 K (500 °C). Sabendo que a potência térmica depositada sobre uma folha metálica como as usadas em janelas de alvos está entre 2 e 40 Watts (1,0 MeVx20 μA até 0,2 MeVx200 μA), é usualmente necessário aplicar algum outro método de retirada de calor das janelas dos alvos, como o resfriamento convectivo, por exemplo.

Tabela 4.5. Calor pedido por radiação por uma folha metálica de 0,75 cm² de área e emissividade 0,5.

Temperatura (K)	Q_{rad} (W)
373	0,0001
473	0,0023
573	0,0117
673	0,0371
773	0,0906
873	0,1878
973	0,3479
1073	0,5935
1173	0,9507
1273	1,449
1373	2,122
1473	3,000
1573	4,138
1673	7,336
1773	9,496

4.7.3. TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR CONDUÇÃO

A condução de calor é o segundo método de transferência de calor. É um modo extremamente importante no projeto e desenvolvimento de alvos para irradiação em ciclotrons, especialmente na construção do porta-alvo, visto que é onde a potência térmica do feixe de partículas é depositada em maior quantidade.

O calor será conduzido das regiões mais quentes de um material para as mais frias de acordo com a Lei de Fourier que, em uma dimensão, é escrita da seguinte forma:

$$Q_{cond} = -k A \frac{dT}{dx} \quad (4.18)$$

onde Q_{cond} é o calor transferido por condução (W); A é a área da seção transversal (cm²); k é

a condutividade térmica do material ($W/cm \cdot ^\circ C$).

Mantendo k , A e Q_{cond} constantes e integrando (4.18), o resultado será a equação de transferência de calor em uma dimensão:

$$Q_{cond} = - \frac{k A (T_1 - T_2)}{x} \quad (4.19)$$

onde x é a distância (cm) que separa as regiões de temperaturas T_1 e T_2 , respectivamente. No caso de uma janela metálica de raio r_0 , irradiada por um feixe de prótons de raio r_i , no equilíbrio térmico o calor transferido por condução da área central mais quente para as áreas periféricas mais frias é dado por:

$$Q_{cond} = - \frac{2 \pi k L (T_i - T_0)}{\ln \left(\frac{r_0}{r_i} \right)} \quad (4.20)$$

onde L é a espessura da janela (cm); T_i é a temperatura do centro da janela ($^\circ C$); T_0 é a temperatura da borda da janela ($^\circ C$); r_0 é o raio da janela (cm); r_i é o raio do feixe de partículas (cm); e k é a condutividade térmica ($W/cm \cdot ^\circ C$) do material da janela.

Na equação (4.20), foram feitas duas suposições:

- (1) A condutividade térmica não varia em função da temperatura;
- (2) A área onde o feixe atinge a janela está em uma temperatura uniforme.

Estas suposições são raramente válidas, mas elas dão uma estimativa razoável do calor dissipado por diferentes processos. Elas também são razoavelmente válidas em poucos casos específicos. É usual, nestas suposições, conhecer a potência que está sendo depositada sobre a janela, que é dada pela seguinte expressão:

$$P(W) = E(MeV) \times I(\mu A) \quad (4.21)$$

onde E é a energia perdida pelo feixe ao atravessar a janela; e I é a corrente do feixe.

O parâmetro que deve ser calculado é a temperatura da janela na área onde o feixe colide, de forma a determinar se a folha irá suportar a carga de calor. No caso de uma folha de alumínio de espessura igual a 0,0254 cm (0,010”), a energia depositada por um feixe de prótons de 18 MeV de energia cinética será de 1,35 MeV. Em um feixe de 20 μ A de corrente, a potência depositada sobre a folha será de 27 W. A condutividade térmica do alumínio a 300 K é 2,37 W/cm °C. Se o feixe tem um raio de 0,5 cm e a folha um raio de 1,5 cm, então a temperatura no centro da mesma será dada pela seguinte relação:

$$T_i = \frac{Q_{cond} \ln\left(\frac{r_0}{r_i}\right)}{2\pi k L} + T_0 \rightarrow T_i = 350 K \quad (4.22)$$

Esta temperatura calculada está bem abaixo do ponto de fusão do Havar®. A conclusão é que a refrigeração por condução não será suficiente para materiais de baixa condutividade térmica.

4.7.4. TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR CONVECÇÃO

A última forma de transferência de calor é a convecção, que é a mais difícil de se obter boas estimativas. A equação de transferência de calor por convecção é como segue:

$$Q_{conv} = h A (T_1 - T_2) \quad (4.23)$$

onde Q_{conv} é o calor transferido por convecção (W); A é a área da superfície (cm^2); h é o coeficiente de película ($W/cm^2 K$); e T é a temperatura (K).

Existem duas maneiras de transferência de calor por convecção, livre e forçada. Na convecção livre, os padrões de fluxo de calor são determinados principalmente pelos efeitos de empuxo no interior do meio, enquanto que na convecção forçada, os

padrões de fluxo de calor são determinados por outras forças, como ventiladores ou jatos. Na maior parte dos casos práticos, o coeficiente de película para um sistema em particular deve ser determinado experimentalmente, de forma a se obter um valor o mais preciso possível.

Algumas relações empíricas podem ser usadas para estimar a grandeza desta quantidade para um amplo espectro de situações, as quais se encontram tabuladas em inúmeros compêndios que tratam da fenomenologia da transferência de calor. O problema nas estimativas deste coeficiente vem das camadas limites que existem entre um fluido em movimento e a superfície de um fluido estacionário. Por exemplo, se um líquido ou gás está em escoamento laminar paralelo a uma placa muito lisa, como mostra a figura 4.13, uma camada limite é criada ao longo desta placa plana.

Figura 4.13. Fluxos (a) laminar e (b) turbulento através de uma placa plana e lisa.

Bem próximo à camada limite entre o fluido e a superfície, a velocidade de escoamento é praticamente nula devido à viscosidade do fluido. Conforme o fluido escoar ao longo da placa, a espessura da camada limite tende a crescer. Cada “laminação” no fluido se arrasta sobre a camada adjacente e faz com que a espessura da camada limite aumente. A espessura da camada limite diminui com o aumento da velocidade de escoamento. Se o fluido e a placa estão em temperaturas diferentes, então será criada também uma camada limite térmica. Como consequência do aumento da espessura desta

camada limite, a transferência de calor irá diminuir enquanto o fluido estiver escoando sobre a superfície. Na camada mais próxima à superfície da placa, o calor é transferido quase que totalmente por condução através do fluido. Na camada seguinte, uma parte do calor é retirado pelo próprio escoamento do fluido e outra parte é transferida por condução para a próxima camada, e assim por diante, por todas as camadas limites. Deve-se salientar que esta camada limite é, na verdade, uma mudança continua na velocidade do líquido de quase zero próximo à superfície da placa, até a velocidade de equilíbrio da massa de fluido a alguma distância da placa. Se há turbulência no sistema, então o calor será transferido de forma muito mais eficiente pelas correntes de redemoinho que são criadas pelos fluxos turbulentos.

As características do fluxo através de uma superfície são também descritas em termos de vários parâmetros adimensionais. O primeiro deles é o Número de Reynolds, que é definido segundo a relação seguinte:

$$Re = \frac{x v \rho}{\mu} \quad (4.24)$$

onde Re é o número de Reynolds; v é a velocidade da massa de fluido (cm/s); ρ é a densidade do fluido (g/cm^3); μ é a viscosidade do fluido ($g/cm \ s$); e x é a dimensão significativa (cm).

O Número de Reynolds representa a razão entre as forças inerciais e as forças viscosas do fluido. Já a definição de x necessita de alguma explicação. Por exemplo, para um líquido escoando no interior de um tubo, a dimensão significante será o raio do tubo. No caso de um líquido escoando sobre uma superfície plana e lisa, x não é tão facilmente definido; mas se há uma redução na espessura da camada limite, então esta é usualmente escolhida como a dimensão significante.

A transição entre fluxo laminar e fluxo turbulento é determinado pelo Número de Reynolds. Para Números de Reynolds pequenos, o fluxo é laminar, e para altos, o fluxo tende a ser turbulento. A transição de um tipo de fluxo para outro tipo dependerá de um número de fatores incluindo a rugosidade da superfície e a exata geometria. Uma

grande regra prática é que Números de Reynolds abaixo de 1000 representam fluxos laminares, e acima de 5000 representam fluxos turbulentos. Na região de transição entre 1000 e 5000, o fluxo pode ser tanto laminar quanto turbulento, dependendo do fluido e das superfícies de contato.

O segundo parâmetro adimensional que é usado em transferências de calor por convecção é o Número de Prandtl, que é definido pela seguinte relação:

$$Pr = \frac{C_p \mu}{k} \quad (4.25)$$

onde Pr é o Número de Prandtl; C_p é a capacidade térmica do fluido ($J/g\ K$); μ é a viscosidade do fluido ($g/cm\ s$); e k é a condutividade térmica ($W/cm\ K$).

O Número de Prandtl representa a razão entre as propriedades viscosas e as propriedades de transferência de calor. Ele serve para comparar a camada de fronteira hidrodinâmica com a camada de fronteira térmica. Em fluxo convectivo livre, há um parâmetro adimensional chamado Número de Grashof, que é definido segundo a relação:

$$Gr = \frac{L^3 \rho^2 g \beta (T_w - T_b)}{\mu^2} \quad (4.26)$$

onde Gr é o Número de Grashof; L é o comprimento característico (cm); ρ é a densidade do fluido (g/cm^3); β é o coeficiente de expansão volumétrica (K^{-1}); g é a aceleração da gravidade (cm/s^2); μ é a viscosidade do fluido ($g/cm\ s$); T_w é a temperatura da parede (K); e T_b é a temperatura da massa de fluido (K).

Este número expressa a relação entre as forças que provocam a fluidez do líquido e aquelas forças que tendem a retardar o escoamento.

O parâmetro final a ser tratado na transferência de calor por convecção é o Número de Nusselt, que é definido para os casos de convecção forçada pela seguinte relação:

$$Nu = \frac{hx}{k} \quad (4.27)$$

onde Nu é o Número de Nusselt; h é o coeficiente de película ($W/cm^2 K$); x é o comprimento significativo (cm); e k é a condutividade térmica ($W/cm K$).

O Número de Nusselt tem a forma de uma condutibilidade térmica, e pode ser pensado como a razão entre o calor transportado por convecção e o calor transportado por condução através do fluido. Esta expressão contém o termo h , que é o coeficiente necessário para determinar a transferência de calor de acordo com a equação (4.23). As equações para os diversos tipos de transferência de calor por convecção são baseadas, principalmente, sobre as relações empíricas entre o Número de Nusselt e os outros parâmetros adimensionais. Por exemplo, a expressão para o fluxo laminar em tubos é:

$$\frac{hx}{k} = 1,86 (Re)^{1/3} (Pr)^{1/3} \left(\frac{D}{L}\right)^{1/3} \left(\frac{\mu_b}{\mu_w}\right)^{0,14} \quad (4.28)$$

onde D é o diâmetro do tubo (cm); L é o comprimento do tubo (cm); μ_b é a viscosidade do fluido longe das paredes ($g/cm s$); e μ_w é a viscosidade do fluido na parede ($g/cm s$).

Neste caso, a viscosidade na parede (μ_w) será aproximada usando a viscosidade a uma temperatura média entre a temperatura da parede e do fluido. Se o fluxo no interior do tubo é turbulento (como definido pelo Número de Reynolds), então a relação fica da seguinte forma:

$$\frac{hx}{k} = 0,023 (Re)^{0,8} (Pr)^{1/3} \left(\frac{\mu_b}{\mu_w}\right)^{0,14} \quad (4.29)$$

Se a transferência de calor for por convecção livre (sem circulação forçada do fluido), então o Número de Nusselt será dado pela seguinte relação:

$$Nu = 0,61 (Gr)^{1/4} (Pr)^{1/4} \text{ para } 10^3 < Gr < 10^7 \quad (4.30)$$

$$Nu = 0,73 (Gr)^{1/4} (Pr)^{1/4} \text{ para } 10^8 < Gr < 10^{10}$$

Estas relações particulares são válidas para um fluxo vertical, passando pelas paredes, que é a situação mais comum na tecnologia de alvos para irradiação em ciclotrons, especialmente o caso da maioria dos alvos sólidos metálicos, onde há o fluxo de água sobre uma placa plana disposta em ângulo em relação à horizontal.

A figura 4.14 mostra como as correntes de convecção podem ser criadas em um alvo gasoso e estático durante a irradiação⁴⁵. Se o gás está fluindo através do alvo, a situação é alterada para o caso de uma convecção forçada, e as equações apropriadas para este tipo de transporte de calor devem ser usadas.

Figura 4.14. Exemplo de padrão de fluxo de calor no interior de um alvo gasoso durante irradiação. O movimento do gás pode ser livre ou forçado.

Na tecnologia de desenvolvimento de alvos para irradiação em ciclotrons, é usual adotar tanto a convecção livre quanto a forçada. Em alvos líquidos ou gasosos durante as irradiações, o aquecimento dos fluídos no interior dos porta-alvos iniciará correntes de convecção livres. Este fluxo de matéria ajudará na remoção de uma parte do calor do fluído, minimizando os efeitos de redução da densidade. É comum que tenha algum fluxo de convecção forçada do gás sobre a janela frontal do alvo e também um fluxo de água forçado ao redor de todo o corpo do porta-alvo. Por diversas razões, o gás usado para refrigerar as janelas tem sido o hélio pressurizado. Sabendo que o hélio possui uma

viscosidade muito baixa, ele é muito eficiente no resfriamento das janelas frontais da maioria dos porta-alvos para irradiações de líquidos e gases, além do fato do hélio não se tornar ativo, mesmo após muitas horas de irradiação. Alguns valores típicos para os fluídos usados em refrigeração de janelas e porta-alvos são dados na tabela 4.5 e na tabela 4.6.

Tabela 4.5. Parâmetros de transporte de calor para água e nitrogênio.

Fluído	Temperatura (K)	Capacidade Térmica, C_p (J/g K)	Condutividade Térmica, k (mW/cm K) ^a	Viscosidade, μ (cP) ^b
Água	273	4,2177	5,65	1,787
	280	4,197	5,74	1,472
	290	4,184	5,90	1,081
	300	4,179	6,04	0,8513
	320	4,1799	6,37	0,5755
	340	4,1879	6,56	0,4213
	360	4,2023	6,75	0,3259
	373	4,216	6,83	0,2818
Nitrogênio	250	0,05833	0,19	0,01563
	300	0,05886	0,2598	0,01707
	350	0,05939	0,2939	0,01986
	400	0,05993	0,3252	0,02191
	500	0,06099	0,3864	0,02554
	600	0,06206	0,441	-----
	763	-----	-----	0,03374

^a multiplicado por 10^{-3} resulta Joule/s.

^b cP (centiPoise) multiplicado por 10^{-2} resulta em g/cm.s.

4.8. MATERIAIS PARA PORTA-ALVOS

Existem cinco características fundamentais que devem ser consideradas nos projetos de estações de irradiação e dispositivos porta-alvos. São elas:

- (1) Manuseabilidade do alvo antes e após a irradiação;
- (2) Reatividade química;

- (3) Ativação;
- (4) Facilidade de fabricação;
- (5) Resistência mecânica;
- (6) Condutividade térmica.

Estas características tem igual importância na escolha dos materiais de um porta-alvo. Amostras dos materiais mais comuns utilizados na construção destes dispositivos, em conjunto com alguns valores destas cinco características, são apresentados na tabela 4.7.

Tabela 4.6. Parâmetros de transporte de calor para o hélio^a.

Temperatura ^b (K)	Condutividade Térmica, k (mW/cm K) ^c	Temperaturas (K) ^d	Viscosidade, μ (cP) ^e
200	1,151	273	0,01861
300	1,499	293	0,01941
350	1,646	373	0,02281
400	1,795	473	0,02672
450	1,947	523	0,02853
500	2,114	680	0,03436
600	2,47	879	0,04087

^a A capacidade térmica do hélio é constante e igual a 0,2967 J/g.K.

^b Esta temperatura é a referência para a condutividade térmica.

^c Multiplicado por 10^{-3} resulta Joule/s.

^d Esta temperatura é referência para a viscosidade.

^e cP (centiPoise) multiplicado por 10^{-2} resulta em g/cm.s.

Uma interpolação linear entre estas temperaturas, embora não muito exata, pode resultar em bons valores para os parâmetros necessários na maioria dos casos práticos.

O material mais comum usado para construção de porta-alvos tem sido o alumínio. Ele tem uma alta condutividade térmica, produtos de ativação de meia-vida curta ou não produzidos em grandes quantidades, é quimicamente inerte em relação à maioria dos gases e líquidos sob irradiação, além de ser de fácil manipulação mecânica. A única

desvantagem está no fato de que o alumínio e suas ligas serem de difícil solda com outros materiais.

Tabela 4.7. Propriedades físicas e térmicas de alguns materiais usados no corpo de porta-alvos.

Material	Condutividade Térmica (W/m °C)	Reatividade Química	Ativação Nuclear	Facilidade de Fabricação	Resistência à Tração (klbf/in ²) ^a
Alumínio	2,37	Bom	p desprezível d - ²⁴ Na	Bom	110
Alumínio 3003	2,63	Bom			130
Alumínio 6061	1,80	Bom			115
Cobre	4,03	Razoável	p - ⁶⁵ Zn, ⁶² Zn, ⁶⁴ Cu; d - ⁶⁵ Zn	Excelente	344
Níquel	0,91	Excelente	p - ⁵⁷ Ni, ⁵⁵ Co d - ⁶⁴ Cu	Bom	175
Monel®	0,32	Excelente	Igual ao Ni	Bom	112
Prata	4,27	Bom	p,d - ¹⁰⁷ Cd, ¹⁰⁹ Cd	Bom	170
Titânio	0,31	Excelente	p - ⁴⁸ V d - ⁴⁹ V	Bom	300
Aço Inoxidável	0,29	Bom	p - ⁵⁶ Co, ⁵⁵ Co d - ⁵⁷ Co, ⁵⁶ Co	Bom	860
Latão	2,01	Razoável	Como o Cu		250
Nióbio	0,54	Excelente		Bom	300

^a 1 lbf/in² = 6,895 kPa

A condutividade térmica do porta-alvo é importante, já que o calor gerado no interior do alvo deve ser transferido através do material do porta-alvo para um dissipador de calor. O método normal de dissipação de calor é a refrigeração pela água. O número de canais de refrigeração, a distância entre as paredes internas e o canal de refrigeração, e a forma como a água de refrigeração atravessa os canais, determina a transferência de calor do corpo metálico do porta-alvo para a água. Aumentando-se a área superficial de contato entre a água de refrigeração e o porta-alvo, e supondo que os Números de Reynolds sejam similares, o calor transferido aumenta. Aletas para aumentar a área superficial, paralelas aos canais de escoamento da água, tem sido usados em alvos que geram grandes quantidades de calor durante as irradiações. Em alguns casos, não é possível o uso da água como fluido de refrigeração, nestas situações, outros líquidos ou

gases devem ser empregados.

A reatividade química do material do porta-alvo é significativa, particularmente se o material retém quimicamente alguns dos radioisótopos produzidos nas irradiações⁴⁷. Este fato pode ser usado com vantagem se o radioisótopo puder ser facilmente removido por enxágue ou alguma outra forma de dissolução química. A compatibilidade química é mais importante para alvos líquidos e sólidos, visto que para estes o material reativo está mais concentrado. A ativação do porta-alvo é uma consideração relevante quando os tempos para reparos e manutenções se tornam frequentes ou longas demais. Este pode ser um fator decisivo para determinar se mais de um porta-alvo será construído, que poderá ser colocado em operação enquanto a radioatividade do outro alvo decai com o tempo.

A usinagem de peças metálicas é um fator de grande peso na concepção de dispositivos porta-alvos, mesmo quando se tem à disposição uma boa oficina mecânica com máquinas de excelente qualidade. O custo de um porta-alvo dependerá, em grande parte, do tempo necessário para sua fabricação. Também é fator crucial a compatibilidade entre materiais diferentes. Se vai haver soldas ou brasagens, todos os materiais envolvidos (metais, ligas e fluxos) devem ser compatíveis com o material do porta-alvo. Alguns projetistas de porta-alvos tem empregado a técnica de eletro-usinagem (EDM) para construir o corpo dos dispositivos porta-alvos. Esta técnica não utiliza substâncias orgânicas, óleos ou solventes durante a fabricação, reduzindo desta forma a contaminação das superfícies por carbono.

Em geral, todo e qualquer tipo de lubrificante de corte deve ser evitado, a não ser que procedimentos muito bem estabelecidos de limpeza estejam disponíveis. Banhos em ultra-som podem ser empregados para remover os solventes que tenham sido utilizados na fabricação das peças. Também é muito recomendado o uso de anéis de vedação feitos de metais, como as flanges tipo CF com anéis de cobre OFHC.

4.9. DENSIDADE DE POTÊNCIA EM ALVOS INCLINADOS

Como já discutido, um dos maiores problemas enfrentados nos projetos de alvos e porta-alvos é a dissipação das grandes quantidades de calor gerado durante as irradiações. Uma abordagem muitas vezes adotada para alvos sólidos é o posicionamento inclinado da superfície do alvo em relação à direção de propagação do feixe de partículas, de forma que o feixe cubra uma porção maior da superfície do alvo, reduzindo a densidade de potência depositada. Isto pode ser feito com relativa facilidade em alvos internos, inclinando o alvo até que a incidência do feixe seja o mais rasante possível, ou então fazendo a superfície do alvo curva e seja posicionado próximo às órbitas externas das partículas aceleradas no interior do acelerador. Um exemplo é mostrado na figura 4.15.

As diferenças nos perfis dos feixes pode ser facilmente visualizada. O primeiro é obtido usando uma placa plana em um ângulo de incidência de uns poucos graus. O segundo perfil é para uma placa que foi modificada para ter um raio de curvatura bem próximo ao raio da trajetória das partículas nas órbitas mais externas. O terceiro é o perfil encontrado quando a placa é colocada de forma bem otimizada para coincidir exatamente com a curvatura do feixe naquela posição.

Porta-alvos inclinados também são largamente usados atualmente em estações de irradiação externas. Um exemplo simples deste tipo de porta-alvo é mostrado na figura 4.16.

4.10. PORTA-ALVO PARA PRODUÇÃO DE ^{201}Tl

O primeiro passo no projeto de um alvo é saber qual o melhor intervalo de energia para que a reação nuclear desejada aconteça. A reação nuclear usada para produções de ^{210}Tl tem sido a reação $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$. O ^{201}Pb ($T_{1/2} = 9,33 \text{ h}$) produzido nesta reação é separado do material do alvo e decai para o ^{201}Tl ($T_{1/2} = 76,03 \text{ h}$). Neste caso, há duas reações nucleares competindo, o que é típico das reações onde mais de um nêutron é emitido do núcleo. Os dados para as seções de choque destas reações nucleares podem

ser facilmente encontrados na literatura especializada, e muitas seções de choque de reações nucleares também podem ser encontradas on-line no *US National Nuclear Data Center*. Um gráfico das seções de choque que competem na irradiação de ^{203}Tl com prótons é mostrado na figura 4.17.

Da figura 4.17, pode ser visto que para energias maiores do que 30 MeV, a produção de ^{200}Pb começa a se tornar significativa. Para energias menores do que 20 MeV, a produção de ^{201}Tl cai para níveis muito baixos. Portanto, o melhor intervalo de energia para maximizar o rendimento e minimizar as impurezas é entre 20 e 30 MeV.

Figura 4.15. Distribuição do feixe e partículas sobre as superfícies de alvos sólidos internos (a) alvo plano; (b) alvo levemente curvo; (c) alvo com curvatura acentuada.

Figura 4.16. Exemplo de alvo inclinado para incidência rasante do feixe. Com esta geometria, aumenta a área efetiva exposta ao feixe, diminuindo a densidade térmica sobre o alvo.

O alvo em si é uma fina camada de ^{203}Tl eletrodepositada sobre uma placa de cobre. O cobre é escolhido porque é relativamente fácil de eletrodepositar tálio sobre sua superfície e possui uma excelente condutividade térmica, que é importante para remover o calor do alvo. Atrás da placa de cobre há um fluxo de água de refrigeração para transferir o calor convectivamente do porta-alvo. Existem vários parâmetros importantes para estes dois materiais, que estão listados na tabela 4.8.

Figura 4.17. Seção de choque vs energia para as reações $^{203}\text{Tl}(p,2n)^{202}\text{Pb}$, $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$ e $^{203}\text{Tl}(p,4n)^{200}\text{Pb}$.

Tabela 4.8. Propriedades importantes do tálio e do cobre.

Elemento	Densidade (g/cm^3)	Ponto de Fusão ($^{\circ}\text{C}$)	Condutividade Térmica ($\text{W}/\text{cm.K}$)
Cobre	8,96	1083	4,03
Tálio	11,85	303	0,46

O passo seguinte é determinar a espessura da camada de tálio que deve ser eletrodepositada sobre a placa de cobre, ou seja, a massa de ^{203}Tl que será irradiada. Para prótons de 30 MeV de energia cinética, o alcance calculado (SRIM) no ^{203}Tl é de 1,75 mm e para prótons de 20 MeV é de 0,89 mm. Então, a espessura necessária de tálio para degradar a energia dos prótons de 30 MeV até 20 MeV é de 0,86 mm. De maneira similar, para degradar a energia de prótons de 20 MeV até 0 (zero) são necessários 0,8 mm de

cobre. De forma a manter a placa de cobre mecanicamente estável, esta é feita com 2 mm de espessura.

Para produzir ^{201}Tl em quantidade suficiente em um tempo razoável, uma corrente de feixe de 50 μA é suficiente. Isto significa que a potência total depositada no alvo é de 1500 W. Para verificar a eficiência do sistema de refrigeração da placa de cobre, um projeto piloto deve ser feito e testado antes de qualquer irradiação. Um desenho preliminar de um sistema de refrigeração para alvos de tálio é mostrado na figura 4.18.

Supondo que o feixe de prótons seja uniforme (o que não é usualmente verdade) e possui um diâmetro de 1 cm, o primeiro passo é determinar se é possível remover o calor com esta configuração. A equação de transferência de calor por convecção pode ser usada aqui para determinar o coeficiente de película. A área de refrigeração será ligeiramente maior do que a área frontal do feixe. A área do feixe é 0,78 cm^2 será então assumido que a área de refrigeração é de 1 cm^2 . É desejável manter a temperatura da placa bem abaixo da temperatura de fusão do tálio. Considerando que a temperatura da placa de cobre não seja maior do que 200 $^{\circ}\text{C}$, e que a temperatura da água na entrada do sistema de refrigeração igual a 20 $^{\circ}\text{C}$, pode-se determinar o coeficiente de filme com a relação abaixo:

$$Q_{\text{conv}} = h A (T_1 - T_2) \quad \text{ou} \quad h = \frac{Q}{A (T_1 - T_2)} \quad (4.31)$$

$$h = \frac{1500 \text{ W}}{(1 \text{ cm}^2)(200 - 20) ^{\circ}\text{C}} = 8,3 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2 ^{\circ}\text{C}}$$

Com este valor de h , é possível encontrar o Número de Nusselt.

$$Nu = \frac{h x}{k} = \frac{(8,3 \text{ W.cm}^{-2} . ^{\circ}\text{C}) \times (1 \text{ cm})}{(0,00593 \text{ W.cm}^{-1} . ^{\circ}\text{C})} \quad (4.32)$$

$$Nu = 1400$$

Se o fluxo for considerado sobre uma placa plana, então pode ser escrito:

$$Nu = 0,332 Re^{1/2} Pr^{1/2} \quad (4.33)$$

O Número de Prandtl é dado pela expressão (4.25). Para água a 290 K, este Número pode ser calculado pela seguinte expressão:

$$Pr = \frac{(4,179 J \cdot g^{-1} \cdot K^{-1}) \times (0,008513 g \cdot cm^{-1} s^{-1})}{(0,00604 W \cdot cm^{-1} K^{-1})} \quad (4.34)$$

$$Pr = 5,89$$

Portanto, o Número de Reynolds deve ser igual a:

$$Re^{1/2} = \frac{Nu}{0,332 \times Pr^{1/2}} = \frac{1400}{0,332 \times 2,43} = 1737 \quad (4.35)$$

$$Re = 3,02 \times 10^6$$

Figura 4.18. desenho preliminar de um alvo de tálio.

Este fluxo é turbulento. Se a dimensão crítica x é assumida ser igual a 1 cm, então a velocidade da água necessária para refrigerar o porta-alvo pode ser calculada usando a relação (4.24) onde é definido o Número de Reynolds.

$$v = \frac{Re \mu}{x \rho} = \frac{(3,02 \times 10^6)(0,008513 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})}{(1 \text{ cm})(1,0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3})} \quad (4.36)$$

$$v = 2,6 \times 10^4 \text{ cm/s}$$

Supondo que a área de refrigeração é igual a 0,5 cm por 2,0 cm, então o volume de água que deve ser bombeado através do porta-alvo tem que ser:

$$Fluxo = (2,6 \times 10^4 \text{ cm/s})(1 \text{ cm}^2) = 2,6 \times 10^4 \text{ cm}^3/\text{s} = 26 \text{ litros/s} \quad (4.37)$$

Este é um valor bem razoável de água fluindo para refrigerar um volume tão pequeno. A transferência de calor pode ser melhorada de várias maneiras, tais como a redução da câmara de passagem da água, de forma que a velocidade de escoamento seja aumentada, ou então aumentando a área da superfície de troca de calor, inclinando o alvo em relação à direção de propagação do feixe de partículas.

Há um outro parâmetro que ainda não foi considerado: a transferência de calor entre a camada de tálio (que é o alvo propriamente dito) e a placa de cobre, e daí para a água. Este é um problema de transferência de calor por condução, e a equação de transferência é dada pela seguinte expressão:

$$Q_{cond} = - \frac{k A (T_1 - T_2)}{x} \quad (4.38)$$

A transferência de calor também pode ser escrita da seguinte forma:

$$Q = \frac{T_i - T_f}{R_{total}} \quad (4.39)$$

Em analogia com a resistência elétrica à passagem do fluxo de cargas elétricas, a resistência total é a soma das resistências individuais. Neste caso, há dois metais, e como primeira aproximação, pode-se supor que todo o calor se propaga através da placa de cobre, caso em que o gradiente de temperatura será dado por (4.40).

Para o tálio, será necessária a transferência de de 1500 Watts através da camada eletrodepositada, mas esta potência térmica é depositada sobre a superfície da camada. Como aproximação, considera-se que o calor seja depositado no meio da camada e não em sua superfície. Aplicando-se as mesmas análises anteriores, o gradiente térmico será dado por:

$$T_1 - T_2 = \frac{Q x}{k A}$$

$$T_1 - T_2 = \frac{(1500 \text{ W})(0,2 \text{ cm})}{(4,03 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})(1 \text{ cm}^2)} \quad (4.40)$$

$$T_1 - T_2 = 74 \text{ K}$$

$$T_1 - T_2 = \frac{Q x}{k A}$$

$$T_1 - T_2 = \frac{(500 \text{ W})(0,043 \text{ cm})}{(0,46 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})(1 \text{ cm}^2)} \quad (4.41)$$

$$T_1 - T_2 = 47 \text{ K}$$

Mesmo admitindo-se que a potência seja transferida através de toda a camada de tálio, neste caso o diferencial de temperatura seria de apenas 94 K. Pode-se verificar que o fator limitante para este porta-alvo é a água de refrigeração na parte posterior do alvo. Se a área da superfície de resfriamento for aumentada por um fator 5 e a velocidade de escoamento for aumentada também pelo mesmo fator, então o fluxo de água poderá ser reduzido de 26 l/s para cerca de 1 l/s.

4.11. PORTA-ALVO DE GÁS PARA PRODUÇÃO DE ^{11}C

Como no caso para o tálio, o primeiro passo é determinar qual é o intervalo

de energia para produção de ^{11}C por meio da reação nuclear $^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$. Neste caso, não há reações competindo, de forma que todo o intervalo de energia pode ser explorado. A seção de choque do nitrogênio para produção de ^{11}C é mostrada na figura 4.19.

Figura 4.19. Seção de choque do ^{14}N para produção do ^{11}C via reação $^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$.

Pode ser visto que o melhor intervalo de energia para produção de ^{11}C via reação $^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$ está entre 4 e 15 MeV. Acima de 15 MeV a seção de choque cai rapidamente.

Sabendo-se que a maioria dos ciclotrons usados nas produções de radioisótopos para tomografia PET tem energia em torno de 17 MeV, presume-se que esta seja a energia de entrada nos alvos, sendo que pelo menos 15 MeV deve chegar ao gás dentro do porta-alvo. O alcance de prótons de 15 MeV de energia cinética ao incidir em nitrogênio, na pressão de 1 *atm* é de 2,31 m. A pressão no interior do porta-alvo deve então ser aumentada com a finalidade de obter um alcance mais razoável, ou seja, de alguns centímetros e não metros. Assim, deve-se calcular qual a máxima pressão que a janela frontal do porta-alvo suporta. Se a janela for de alumínio e se for possível perder até 2,0 MeV de energia nela, então:

- (a) O alcance para prótons de 17 MeV no alumínio é 1,58 mm.
- (b) O alcance para prótons de 15 MeV no alumínio é 1,27 mm.
- (c) A espessura da janela de alumínio é 0,31 mm.

Para janelas desta espessura, a relação empírica para o alumínio pode ser usada. Assumindo que o diâmetro da folha é de 2,54 cm, tem-se:

$$p_{max} = 55,2 \left(\frac{t}{D} \right) \quad (4.42)$$

para $0 < x < 1$

Em (4.42) a espessura t da folha deve ser expressa em milésimos de polegada, ou seja, $(0,31 \text{ mm} / 25,4 \text{ mm/inch}) \times 1000 = 12,2 \times 10^{-3} \text{ polegadas}$. Com este dado, a máxima pressão suportada pela janela de alumínio do porta-alvo será:

$$p_{max} = 55,2 \left(\frac{12,2}{1} \right) = 671 \frac{\text{lbf}}{\text{pol}^2} = 45 \text{ atm} = 4,626 \text{ MPa} \quad (4.43)$$

Esta deve ser a pressão suportada pela janela durante a irradiação. É óbvio que a capacidade do alumínio suportar tensões diminui com o aumento da temperatura, tanto que há a necessidade de estimar a temperatura da janela, e a pressão no interior do porta-alvo durante a irradiação. Visto que a maior parte do calor gerado será transferido via condução, a temperatura no centro da janela estará diretamente relacionada com a corrente de feixe sobre o porta-alvo. Como pressuposto, considera-se uma corrente de feixe de 30 μA , e uma perda de energia na janela de 2 MeV, resultando em uma potência térmica de 60 Watts depositada sobre a folha de alumínio. Uma estimativa da temperatura da janela pode ser feita mediante um cálculo matemático simples, utilizando o diagrama mostrado na figura 4.20.

Supondo-se que a condutividade térmica do alumínio seja 2,37 $\text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C}$, e que a superfície para transferência de calor seja considerada igual a área da seção transversal do feixe de prótons (“spot”), a distância percorrida pelo calor até o dissipador será igual a distância entre a borda da janela e a flange externa do porta-alvo. De acordo com a figura 4.20, a área lateral de troca de calor é igual a:

$$A = \pi D \times \text{espessura} \quad (4.44)$$

$$A = (3,14159)(1 \text{ cm})(0,031 \text{ cm}) = 0,097 \text{ cm}^2$$

A distância entre esta área lateral e a borda da janela é igual a $x = 1,27 - 0,5 = 0,77 \text{ cm}$. Com estes resultados, tem-se:

$$T_1 - T_2 = \frac{P x}{k A} = \frac{(60 \text{ W})(0,77 \text{ cm})}{(2,37 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot ^\circ\text{C})(0,097 \text{ cm}^2)} \quad (4.45)$$

O que resulta em:

$$T_1 - T_2 = 200,97 ^\circ\text{C} \quad (4.46)$$

Figura 4.20. Diagrama do feixe de prótons incidindo sobre a janela de entrada de um porta-alvo de gás.

Supondo-se que a temperatura ambiente seja de $20 ^\circ\text{C}$ e que a temperatura da flange externa seja um reservatório infinito de calor, então a temperatura no centro da janela será de aproximadamente $200 ^\circ\text{C}$. Supondo o pior cenário, ou seja, que a distância que o calor tem que atravessar seja medida a partir do centro da janela e não da borda do feixe, o diferencial de temperatura neste caso será de $305 ^\circ\text{C}$, podendo atingir um valor máximo de $325 ^\circ\text{C}$. Nesta temperatura, a elasticidade do alumínio é cerca de um terço de seu valor na temperatura ambiente, como pode ser visto no gráfico da figura 4.21. Isto significa que o porta-alvo não pode ser usado acima de 15 atm ($1,52 \text{ Mpa}$). Análises mais precisas e exatas da temperatura da janela mostram uma temperatura no centro da folha de $201 ^\circ\text{C}$, o que significa que as primeiras estimativas estavam bem razoáveis. A elasticidade a $200 ^\circ\text{C}$ tem um valor próximo àquele encontrado na temperatura de $25 ^\circ\text{C}$. De forma um

pouco mais conservadora, a pressão no porta-alvo deverá ser mantida abaixo do limite de 15 atm (1,52 Mpa).

Sabendo-se que o feixe de prótons atravessa 2,31 m de nitrogênio gasoso em temperatura e pressão normais, em 15 atm, necessita de apenas 15 cm de gás para que o mesmo feixe seja parado completamente. Durante a irradiação, devido ao calor, o feixe vai se alargando e diluindo, por este motivo, o comprimento estimado para o porta-alvo é de 20 cm.

Figura 4.21. Porcentagem de elasticidade em função da temperatura para alguns materiais comuns na fabricação de janelas para porta-alvos líquidos e gasosos.

É necessário calcular outras dimensões do porta-alvos. O método usual de construir um porta-alvo tem sido a geometria interna cônica, o que minimiza o volume de gás a ser usado. Supõe-se que os porta-alvos sejam construídos de alumínio, como o são os porta-alvos para produção de ^{11}C . Deve-se evitar incidir o feixe de prótons nas laterais internas do corpo do porta-alvo, uma vez que isto poderá reduzir a AE desejada, devido a produção de isótopos contaminantes. O ângulo entre a direção de propagação do feixe após passar pela janela deve ser muito bem calculado. O espalhamento do feixe ao atravessar a janela frontal é dado pela relação (4.14):

$$\sigma^2 = 0,0536 \left(\frac{x Z^2 z^2 \ln \left(\frac{3,67 \times 10^4 E}{z Z^{4/3}} \right)}{A E^2} \right)$$

$$\sigma^2 = 0,0536 \frac{0,084 \times 13^2 \times 1^2 \times \ln \left(\frac{3,67 \times 10^4 \times 16}{1 \times 13^{4/3}} \right)}{27 \times 16^2} \quad (4.47)$$

$$\sigma = 0,0329 \text{ rad} = 1,67^\circ$$

Figura 4.22. Distribuição espacial do feixe antes e depois de ser espalhado pela janela de alumínio de 0,031 cm de espessura, medida a uma distância de 20 cm da janela.

Como o alvo tem 20 *cm* de comprimento, a distribuição do feixe nestes 20 *cm* partindo da janela de entrada pode ser calculada para determinar a melhor geometria interna do porta-alvo. Este valor de σ em 20 *cm* corresponde a uma distância de 0,58 *cm*. Um perfil de feixe plano de dimensões apropriadas (1 *cm* de diâmetro) pode ser usado para estimar a distribuição na parte posterior do porta-alvo. A parte posterior do porta-alvo deve ter 3 *cm* de diâmetro, e a distribuição espacial do feixe para este caso é mostrada na figura 4.22.

Pode ser visto que um porta-alvo que tenha 3 *cm* de diâmetro em sua parte posterior é mais do que suficiente para acomodar o espalhamento das partículas do feixe após atravessarem a janela de alumínio. Com isto, o volume do porta-alvo pode ser

calculado. Uma incerteza no diâmetro do feixe e também na posição onde este incide sobre a janela diz que o diâmetro do porta-alvo deve ser ligeiramente aumentado em relação aos valores calculados.

4.12. CONCLUSÕES

Regras e equações relativamente simples podem ser usadas para o projeto e construção de novos dispositivos porta-alvos e estações de irradiação para produções de radioisótopos em aceleradores ciclotrons, e auxiliar pessoas não familiarizadas com a tecnologia de alvos entender o balanço de forças em cada situação individual⁴⁸. Descrições mais elaboradas e precisas ou simulações computacionais podem ser empregadas com muitas vantagens, mas os cálculos simples apresentados aqui que podem ser feitos rapidamente, fornecem uma boa base comparativa na descrição do problema, além de garantir que os resultados obtidos tanto de uma forma quanto de outra, sejam razoáveis.

5. IRRADIAÇÃO DE ALVOS SÓLIDOS

Existem vários fatores que contribuem para a máxima corrente de feixe que pode ser direcionada sobre alvos sólidos. A densidade do feixe é o primeiro deles. Se existem pontos de concentração de cargas no feixe (*hot spots*), a maior corrente que poderá ser usada para irradiar um alvo sólido deverá ser bem menor quando comparada com a corrente de feixe de perfil mais uniforme. A refrigeração do alvo é outro fator, e alguns exemplos de cálculos para otimização da refrigeração baseados na geometria do sistema alvo mais porta-alvo serão apresentados a seguir.

5.1 MODELO DE TRANSFERÊNCIA DE CALOR

Neste capítulo, serão apresentados os cálculos feitos para irradiação de um alvo de tálio típico. Entretanto, os mesmos cálculos poderão ser aplicados a muito outros casos onde os alvos são metais eletrodepositados sobre placas metálicas, como cobre ou níquel. A escolha do tálio é devido ao seu baixo ponto de fusão, o que representa uma séria dificuldade em se tratando de alvos de alto desempenho.

Os alvos de tálio podem ser considerados como um sistema de três camadas, voltadas para a região de alto vácuo do acelerador por um lado, e do outro lado um fluido refrigerante, como mostra a Figura 5.1.

A primeira camada é de tálio eletrodepositado, com uma espessura física $a=80 \times 10^{-4}$ cm. Nesta camada é produzido ^{201}Pb via reação nuclear $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$ provocada pelo feixe de prótons de 28 MeV de energia cinética, que incide sobre esta camada com um ângulo de inclinação de 5° a 7° . Devido à excitação, ionização e *bremsstrahlung*, os prótons perdem energia cinética nesta primeira camada, a qual é convertida em calor. Assumindo uma irradiação homogênea, isto é, que a densidade superficial de corrente ($\mu\text{A}/\text{mm}^2$) seja constante sobre toda a superfície de área S do alvo ($S=11,69 \text{ cm}^2$), a taxa de produção de calor q_T (J/s) e a taxa de produção de calor por

unidade de volume $q_{v,Tl}$ ($J/cm^3.s$) estão relacionadas pela seguinte expressão:

$$q_{Tl} = q_{v,Tl} a S \quad (5.1)$$

Figura 5.1. Alvo sólido de tálio mostrando o sistema de três camadas.

A segunda camada é de cobre OFHC, tem uma espessura física de “ b ” cm . Nesta camada, os prótons que emergem da camada anterior de tálio são completamente paradas. A taxa de produção de calor q_{Cu} e a taxa de produção de calor por unidade de volume $q_{v,Cu}$, nesta camada, estão relacionadas por:

$$q_{Cu} = q_{v,Cu} b S \quad (5.2)$$

A terceira camada, também de cobre OFHC, tem uma espessura física de “ c ” cm e serve apenas como suporte mecânico para as camadas anteriores. O calor total (q_T) produzido nas camadas anteriores é transferido para o líquido refrigerante através desta última camada por meio de condução térmica:

$$q_T = q_{Tl} + q_{Cu} \quad (5.3)$$

Na última camada, o calor é então transferido ao líquido de refrigeração apenas por convecção, isto é, não há nucleação por sub-resfriamento, e a temperatura de

toda a massa de líquido refrigerante permanece constante (T_w).

Nas condições de regime estacionário, o perfil de temperatura ao longo de todas as camadas é como mostrado na Figura 5.2.

Figura 5.2. Perfil térmico através do alvo de tálio. $T_{\max}$ é a máxima temperatura da interface tálio/vácuo e T_w é a temperatura da água de refrigeração. As outras temperaturas se referem às interfaces entre as várias camadas.

5.2 PERFIL DE FEIXE

A densidade de corrente de feixe é também um parâmetro crítico na determinação da quantidade de radioisótopo que pode ser produzido em um determinado alvo⁴⁹. Se a densidade de corrente é muito alta, alvos sólidos podem ser queimados, fundidos ou até mesmo sublimados, e alvos líquidos ou gasosos terão uma grande redução de densidade.

Se o feixe apresenta regiões de alta concentração de cargas (picos na intensidade do feixe), poderá haver áreas dos alvos sólidos que serão queimadas, no caso de materiais fluidos, áreas onde a densidade de material cai a valores muito próximos de zero, ou seja, não há material na frente do feixe para ser irradiado. Claro que todas estas

condições acarretam perda de rendimento, e portanto, a densidade de corrente de feixe deve ser mantida o mais constante possível. Aceleradores de íons negativos, como já mencionado diversas vezes ao longo deste trabalho, apresentam vantagens sobre os aceleradores de íons positivos, principalmente no tocante à uniformidade e consistência do feixe de partículas⁵⁰. Aceleradores de íons negativos usam *streppers* para extração feixe, o que tende a fazer com que o perfil espacial do feixe seja muito mais homogêneo. É possível calcular este efeito usando as equações de espalhamento em pequenos ângulos, encontradas no capítulo anterior, ou empregando métodos de Monte Carlo para obter algumas simulações numéricas sobre o perfil espacial do feixe de partículas após passarem através da folha de carbono²⁸.

Assumindo uma distribuição Gaussiana⁵¹ de densidade de corrente na saída de um colimador cilíndrico, a densidade de corrente de feixe é representada pela seguinte expressão:

$$j(r) = j_m e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}} \quad (5.4)$$

onde j_m é a máxima densidade de corrente ($\mu A/mm^2$); σ é o desvio padrão da distribuição Gaussiana (mm^{-2}); e r é a distância radial do colimador circular (mm).

Com isto, a corrente total do feixe será dada pela integral de $j(r)$ em toda a área do colimador:

$$I_F = \int_0^{2\pi} \int_0^\infty j(r) dA \quad (5.5)$$

Usando coordenadas cilíndricas, tem-se:

$$I_F = \int_0^\infty j_m e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}} 2\pi r dr = -2\pi \sigma^2 j_m \int_0^\infty d\left(e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}}\right) \quad (5.6)$$

$$I_F = 2\pi \sigma^2 j_m$$

A corrente total que incide sobre a superfície do alvo pode então ser calculada da seguinte forma.

$$I_A = \int_0^{2\pi} \int_0^R j(r) dA \quad (5.7)$$

Da mesma forma como feito em (5.6), obtém-se para a corrente no alvo:

$$I_A = \int_0^R j_m e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}} 2\pi r dr = -2\pi\sigma^2 j_m \int_0^R d\left(e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}}\right) \quad (5.8)$$

$$I_A = 2\pi\sigma^2 j_m \left(1 - e^{-\frac{R^2}{2\sigma^2}}\right)$$

A eficiência do feixe^{52,61} é definida pela razão entre a corrente no alvo e a corrente no feixe, expressa em porcentagem. Com isto, tem-se:

$$\epsilon_B = \frac{I_A}{I_F} = 100 \left(1 - e^{-\frac{R^2}{2\sigma^2}}\right) \quad (5.9)$$

A equação (5.9) representa a porcentagem do feixe que atinge a superfície do alvo. Na Tabela 5.1, a eficiência está representada como uma função da largura total a meia altura (*FWHM*) e σ .

Tabela 5.1. Eficiência de feixe para diferentes formas de feixe atravessando um colimador cilíndrico de 20 cm de diâmetro.

<i>FWHM</i> (mm)	σ (mm)	ϵ_B (%)	Perda no colimador (%)
5	2,1	100	0
10	4,3	98	2
15	6,4	88	12
20	8,5	76	24

A Figura 5.3 demonstra graficamente o perfil do feixe para diferentes *FWHM*. Esta figura também mostra a quantidade de feixe perdida em um colimador de 20

cm de diâmetro. A corrente total no alvo é a mesma para todas as distribuições.

Figura 5.3. Perfil de feixe para feixes de diversas FWHM passando através de um colimador cilíndrico de 20 cm de diâmetro.

A densidade de corrente é muito maior para feixes mais estreitos do que para os feixes com uma distribuição mais larga, como mostra claramente a Figura 5.3. Como a quantidade de feixe que deve ser depositada no alvo é uma função da densidade de corrente, uma distribuição mais uniforme é em geral a mais preferida. No caso descrito aqui, para distribuições muito estreitas, em torno de 77% do feixe estará no ponto central de 5,0 mm de diâmetro, enquanto aproximadamente 31% da porção mais larga do feixe estará nesta mesma área. Assumindo um feixe de 50 μA de corrente e 15 MeV de energia, o alvo estará sujeito a uma densidade de potência de aproximadamente 3 kW/cm^2 com o feixe mais estreito e uma densidade de potência em torno de 1,2 kW/cm^2 com a distribuição mais larga.

5.3 OSCILAÇÃO DO FEIXE DURANTE A IRRADIAÇÃO

Uma das melhores formas de reduzir a densidade de corrente sobre a

superfície do alvo é fazer com que este “oscile” de um lado para o outro, varrendo toda a superfície do alvo, ou então descrevendo um movimento de varredura no plano XY, chamado *wobbling*. Isto faz diminuir os pontos de alta concentração de cargas (*hot spots*) além de permitir irradiações com valores nominais de corrente de feixe bem mais altos. Para aumentar mais ainda a intensidade da corrente de feixe, basta fazer com que o mesmo oscile de forma circular sobre a superfície do alvo. Com isto, o centro da distribuição Gaussiana do feixe é deslocada ao longo de um raio R_w , que é o raio descrito pela oscilação circular do feixe, a partir do colimador cilíndrico, quando então os prótons são forçados a girar em torno do eixo de simetria, como mostra a Figura 5.4.

Figura 5.4. Oscilação circular do feixe durante a irradiação.

Embora uma parte do feixe se perca sobre a superfície do colimador, pode-se ainda aumentar a intensidade da corrente de feixe sobre o alvo, otimizando o raio de oscilação do feixe. Os cálculos da distribuição média de densidade de corrente de feixe sobre o alvo e da corrente total integrada não podem ser obtidas analiticamente, sendo necessário para os casos de feixes oscilantes integrações numéricas^{53,60}. Um exemplo em três dimensões da distribuição de corrente de feixe é mostrado na Figura 5.5.

Esta distribuição de densidade pode ser usada no modelo de transferência de calor de forma a determinar o perfil térmico através de todo o alvo^{54,55,56}. Por sua vez, isto dará uma boa indicação da máxima corrente de feixe que poderá ser aplicada sobre o alvo

sem que ocorra algum tipo de dano severo. Uma advertência deve ser colocada aqui: faiscamentos no interior do tanque de aceleração do ciclotron são muito comuns, e isto pode causar instabilidades na forma espacial do feixe, e portanto, provocando picos de intensidade variável na distribuição da corrente de feixe. Por esta razão, a prática mais comum tem sido limitar a corrente de feixe em um valor perto de 50% daquele máximo calculado^{57,58,59}.

Figura 5.5. Distribuição da densidade de corrente para um feixe circularmente oscilante.

5.4 EFEITOS DO TRANSIENTE TÉRMICO

Quando um alvo sólido é irradiado com feixes de prótons de energia relativamente baixa (≈ 30 MeV) e altas intensidades de corrente de feixe ($> 200 \mu\text{A}$), muitos são os aspectos relevantes que devem ser cuidadosamente analisados e compreendidos, tais como a geometria empregada, a densidade dos materiais envolvidos, a capacidade e a condutividade térmicas, o perfil espacial do feixe, dentre outras. Muitos destes aspectos já foram discutidos anteriormente neste trabalho. Neste tópico, será analisado um dos fatores que mais comprometem a integridade física de um alvo durante a irradiação: o transiente de temperatura. Este efeito ocorre no início de todas as irradiações, pois neste momento, o alvo está em equilíbrio térmico com o porta-alvo e todo o sistema de refrigeração, em geral na temperatura ambiente. Em outras ocasiões, transientes

térmicos podem acontecer durante a irradiação, devido a bruscas oscilações no perfil de intensidade do feixe, o que pode ser causado por faiscamentos no interior do tanque de aceleração do ciclotron, mudanças nas condições de operação da fonte de íons, dentre outros.

As interações de íons energéticos com a matéria, e geral produz uma densidade relativamente alta de potência térmica (MW/m^2) que deve ser retirada do alvo de forma bastante rápida e eficiente, caso contrário os danos serão irreversíveis. A potência térmica depositada sobre o alvo por um feixe de partículas aceleradas com energia cinética E (MeV) e corrente de feixe I_F (μA) é dada por:

$$P = 2\pi \sigma^2 E j_m \left(1 - e^{-\frac{R^2}{2\sigma^2}}\right) \quad (5.10)$$

Em valores médios, esta expressão se reduz a:

$$P = E \times I \quad (5.11)$$

Assim, para um feixe de prótons de 30 MeV de energia e corrente de feixe de 200 μA , a potência térmica média depositada na superfície do alvo é de 6 kW.

Levando em conta a geometria do alvo, que na maioria dos casos práticos apresenta uma área frontal exposta ao feixe de aproximadamente 0,8 cm^2 , então a densidade de potência térmica será de 75 MW/m^2 .

Considerando a espessura do alvo e sua condutividade térmica, os gradientes de temperatura entre as partes frontal e posterior podem ser estimados. A potência térmica por unidade de área para um fluxo contínuo de energia pode ser escrito da seguinte forma:

$$\frac{P}{A} = \frac{k \times \Delta t}{e} \quad (5.12)$$

onde P é a potência média (W); A é a área da superfície irradiada (cm²); k é a condutividade térmica do material do alvo (W/cm.K) e e é a espessura do alvo (cm).

Considerando-se que a maioria dos alvos sólidos empregados nas produções tem espessuras da ordem de 0,5 mm, os gradientes térmicos para os materiais mais comuns podem ser calculados. A Tabela 5.2 lista alguns destes resultados, considerando uma potência média de 6 kW.

Tabela 5.2. Gradiente de temperatura para diversos materiais empregados em sistemas de irradiação de alvos sólidos em ciclotrons para uma potência térmica média de 6 kW.

Material	k (W/m.K)	ΔT (K)
Prata	406	308
Cobre	385	324
Alumínio	205	609
Óxido de Telúrio	$\approx 0,5$	25.000

Existem inúmeros trabalhos^{62,63,64,65} sobre efeitos térmicos em alvos irradiados com altas correntes de feixe, muitos destes de extrema relevância quando se pretende desenvolver sistemas de irradiação de alvos sólidos, que operam em condições de alto fluxo de partículas e alto desempenho. Porém nenhum destes trabalhos tem abordado os efeitos causados pelos intensos gradientes térmicos sofridos pelos alvos durante as irradiações.

No presente trabalho foi desenvolvido um modelo físico-matemático que leva em consideração não apenas os estados estacionários do sistema, mas principalmente os transientes térmicos que podem ocorrer durante as irradiações, quando o estresse sofrido pelos materiais é muito elevado.

O modelo proposto chega a uma expressão analítica para este problema em particular, cuja solução não há equivalente na literatura especializada, que em geral aborda apenas as soluções numéricas ou então, apenas os estados estacionários.

O problema foi dividido em duas partes distintas, a saber:

- (1) O estado estacionário propriamente dito, cujas soluções são muito bem conhecidas para uma grande variedade de casos práticos⁶⁶;
- (2) Uma função auxiliar, cuja solução é determinada pelo ajuste correto das condições de contorno e de valores iniciais para este problema particular.

Devido à linearidade da equação diferencial que descreve este tipo de problema, uma solução geral foi proposta, sendo a superposição das duas soluções mencionadas acima. Isto conduz a um problema de auto-valores de *Sturm-Liouville*^{67,68}.

As simulações feitas empregando estas soluções particulares para os casos práticos conhecidos, revelam resultados muito satisfatórios e que servirão para análises futuras quando dos desenvolvimentos de sistemas de irradiação de alvos sólidos, onde se pretende altos desempenhos, ou seja, altas correntes de feixe.

5.5 APRESENTAÇÃO DO PROBLEMA

A Figura 5.6 mostra a geometria empregada neste trabalho. A figura mostra uma pastilha que é bombardeada por um feixe de prótons, aqui representado pela função $q(r)$, que na maioria dos casos práticos pode ser expressa da seguinte forma:

$$\begin{aligned} q(r) &= q_0 e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}} \quad \text{para } r \leq a \\ q(r) &= 0 \quad \text{para } r > a \end{aligned} \tag{5.13}$$

Como primeira condição de contorno, foi imposto que, para qualquer tempo, a temperatura da lateral e da parte posterior da pastilha nunca seria maior do que um dado valor fixo T_0 . Este valor é determinado na prática pelo material que será irradiado e também pelo fluido de refrigeração.

Devido à simetria do problema, foi empregada nos cálculos coordenadas cilíndricas com *eixo-z* de simetria ao longo da pastilha.

Figura 5.6. Alvo sólido em formato de pastilha de raio a e espessura e sendo bombardeado por um feixe de prótons representado pela função $q(r)$.

Com estas considerações iniciais, seja $T(r,z,t)$ a temperatura da pastilha em um ponto genérico de coordenadas (z,r) no instante de tempo t . Como o interesse está no gradiente de temperatura entre as partes frontal e posterior do alvo, pode-se escrever:

$$\theta(r, z, t) = T(r, z, t) - T_0 \quad (5.14)$$

E para este problema particular, a equação de difusão de calor é escrita da seguinte forma⁶⁶:

$$\nabla^2 \theta(r, z, t) = \frac{\rho c}{k} \frac{\partial \theta(r, z, t)}{\partial t} \quad (5.15)$$

Onde ρ é a densidade do material irradiado, c é o calor específico e k a condutividade térmica.

No instante inicial, anterior ao início da irradiação, espera-se que todo o

alvo e seus sistemas estejam em equilíbrio térmico na temperatura T_0 , então, da equação (5.14) fazendo $t=0$ tem-se:

$$\theta(r, z, 0) = 0 \quad (5.16)$$

E para todos os outros instantes de tempo, as condições de contorno para r , z e t são:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \theta(r, z, t)}{\partial z} &= -\frac{q(r)}{k} \\ \theta(r, e, t) &= 0 \\ \frac{\partial \theta(0, z, t)}{\partial r} &= 0 \\ \theta(a, z, t) &= 0 \end{aligned} \quad (5.17)$$

A primeira condição de contorno em (5.17) é o termo fonte, não homogêneo da equação diferencial. Ele representa o fluxo de calor na direção do *eixo-z*. A segunda condição vem da imposição de que a temperatura na parte posterior do alvo seja sempre igual a T_0 .

A terceira condição de contorno é imposta por questões físicas, pois não deve haver fluxo de calor na direção- r para $r=0$, e a última condição é imposta para garantir que a temperatura na lateral da pastilha também seja mantida igual a T_0 para qualquer instante de tempo.

Com as condições de contorno dadas em (5.17), pode-se escrever a solução procurada para (5.15) como uma superposição linear de duas outras funções, sendo que uma delas é conhecida e é a solução para tempo infinito, ou seja, a solução para o estado estacionária do problema. A outra função é a solução procurada para o transiente térmico. Supondo estas considerações, pode-se escrever:

$$\theta(r, z, t) = \psi(r, z, t) + \phi(r, z) \quad (5.18)$$

O primeiro termo do lado direito de (5.18) é o transiente térmico procurado, o segundo termo é a solução para o regime estacionário.

Em $t=0$, tem-se:

$$\psi(r, z, 0) = -\phi(r, z) \quad (5.19)$$

Para tempos muito longos, espera-se que toda a solução se aproxime assintoticamente de seu valor estacionário, como mostra a Figura 5.7.

Figura 5.7. Superposição linear da solução para o regime estacionário e para o transiente de temperatura em um alvo sólido irradiado por prótons.

5.6 O ESTADO ESTACIONÁRIO

No equilíbrio, após muito tempo de irradiação, espera-se que:

$$\theta(r, z, t \rightarrow \infty) \approx \phi(r, z) \quad (5.20)$$

Desta forma, a equação de difusão de calor se torna independente do tempo, como a seguir:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial \phi}{\partial r} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} = 0 \quad (5.21)$$

Com as condições de contorno para r e z :

$$\begin{aligned} \phi(a, z) = 0 \quad \text{e} \quad \phi(r, e) = 0 \\ \frac{\partial \phi(0, z)}{\partial r} = 0 \quad \text{e} \quad \frac{\partial \phi(r, 0)}{\partial z} = -\frac{q(r)}{k} \end{aligned} \quad (5.22)$$

Separando as variáveis em (5.21), chega-se nas seguintes equações diferenciais exatas para r e z :

$$\begin{aligned} \frac{d^2 R(r)}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dR(r)}{dr} = -\lambda^2 R(r) \\ \frac{d^2 Z(z)}{dz^2} = \lambda^2 Z(z) \end{aligned} \quad (5.23)$$

As soluções para $R(r)$ e $Z(z)$ devem respeitar as seguintes condições de contorno:

$$\begin{aligned} \frac{dR(0)}{dr} = 0 \quad \text{e} \quad R(a) = 0 \\ Z(e) = 0 \end{aligned} \quad (5.24)$$

A primeira equação em (5.23) é uma equação de Bessel de ordem zero, cujas soluções são:

$$R(r) = A_m J_0(\lambda_m r) + B_m Y_0(\lambda_m r) \quad m=1, 2, \dots, \infty \quad (5.25)$$

Em (5.25) as constantes B_m devem ser todas nulas, pois a Função $Y_0(\lambda_m r)$ não é definida na origem, mas as soluções procuradas devem ser definidas em $r=0$.

A segunda equação em (5.23) tem como solução:

$$Z(z) = C \cosh(\lambda_m z) + D \sinh(\lambda_m z) \quad (5.26)$$

Com a condição de contorno dada em (5.24), pode-se eliminar uma das constantes em (5.26), como segue:

$$D = -C \frac{\cosh(\lambda_m e)}{\sinh(\lambda_m e)} \quad (5.27)$$

Substituindo (5.27) em (5.26), obtém-se a solução para $Z(z)$:

$$Z(z) = E \sinh[\lambda_m(e-z)]$$

$$\text{com } E = \frac{C}{\sinh(\lambda_m e)} \quad (5.28)$$

Com as soluções (5.25) e (5.28), tem-se a solução geral para $\phi(r, z)$:

$$\phi(r, z) = \sum_{m=1}^{\infty} a_m J_0(\lambda_m r) \sinh[\lambda_m(e-z)]$$

$$\text{com } a_m = A_m E \quad (5.29)$$

Empregando-se agora a condição de contorno não homogênea apresentada em (5.17), todos os valores das constantes a_m podem ser calculados, e os resultados são:

$$a_m = \frac{\frac{2}{k} \int_0^a q(r) r J_0(\lambda_m r) dr}{\lambda_m \cosh(\lambda_m e) a^2 J_1^2(\lambda_m a)} \quad (5.30)$$

onde $q(r)$ é dado por (5.13). Substituindo (5.30) em (5.29) tem-se as soluções procuradas para o regime estacionário do alvo irradiado por um tempo muito longo.

A figura 5.8 mostra o perfil térmico no interior de uma pastilha de ^{64}Ni irradiada com prótons de 18 MeV de energia e corrente de feixe de 150 μA .

Figura 5.8. Perfil térmico na pastilha de ^{64}Ni irradiada com prótons de 18 MeV e 150 μA .

A figura 5.9 mostra o perfil térmico no interior de uma pastilha de ^{63}Cu irradiada com prótons de 24 MeV de energia e corrente de feixe de 500 μA .

Figura 5.9. Perfil térmico na pastilha de ^{63}Cu irradiada com prótons de 24 MeV e 500 μA .

A figura 5.10 mostra o perfil térmico no interior de uma pastilha de ^{203}Tl irradiada com prótons de 28 MeV de energia e corrente de feixe de 190 μA .

Figura 5.10. Perfil térmico na pastilha de ^{203}Tl irradiada com prótons de 28 MeV e 190 μA .

A figura 5.11 mostra o perfil térmico no interior de uma pastilha de ^{68}Zn irradiada com prótons de 26 MeV de energia e corrente de feixe de 220 μA .

Figura 5.11. Perfil térmico na pastilha de ^{68}Zn irradiada com prótons de 26 MeV e 220 μA .

A figura 5.12 mostra o perfil térmico no interior de uma pastilha de $^{124}\text{TeO}_2$ irradiada com prótons de 12 MeV de energia e corrente de feixe de 12,5 μA .

Figura 5.12. Perfil térmico na pastilha de $^{124}\text{TeO}_2$ irradiada com prótons de 12 MeV e 12,5 μA .

Em todas as situações mostradas aqui, as pastilhas tem 0,5 mm de espessura e 1 cm de diâmetro.

5.7 O TRANSIENTE TÉRMICO

De (5.15) e (5.18) escreve-se a equação diferencial parcial que descreve o transiente térmico em alvos irradiados:

$$\frac{\partial^2 \psi(r, z, t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \psi(r, z, t)}{\partial r} + \frac{\partial^2 \psi(r, z, t)}{\partial z^2} = \frac{\rho c}{k} \frac{\partial \psi(r, z, t)}{\partial t} \quad (5.31)$$

As condições inicial e de contorno são:

$$\begin{aligned}\psi(r, z, 0) &= -\phi(r, z) \\ \frac{\partial \psi(0, z, t)}{\partial r} &= 0 \quad \text{e} \quad \frac{\partial \psi(r, 0, t)}{\partial z} = 0 \\ \psi(a, z, t) &= 0 \quad \text{e} \quad \psi(r, e, t) = 0\end{aligned}\tag{5.32}$$

Novamente, separando as variáveis, obtém-se:

$$\begin{aligned}\frac{d^2 R(r)}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dR(r)}{dr} + \beta^2 R(r) &= 0 \\ \frac{d^2 Z(z)}{dz^2} + \mu^2 Z(z) &= 0 \\ \frac{d\tau(t)}{dt} + \frac{k}{\rho c} (\mu^2 + \beta^2) \tau(t) &= 0\end{aligned}\tag{5.33}$$

As duas primeiras equações que aparecem em (5.33) devem obedecer as seguintes condições de contorno, respectivamente:

$$\begin{aligned}\frac{dR(0)}{dr} &= 0 \quad \text{e} \quad R(a) = 0 \\ \frac{dZ(0)}{dz} &= 0 \quad \text{e} \quad Z(e) = 0\end{aligned}\tag{5.34}$$

A equação radial é uma equação de Bessel de ordem zero e suas soluções são dadas por:

$$R(r) = B_k J_0(\beta_k r) + D_k Y_0(\beta_k r) \quad , \text{para } k=1, 2, \dots, \infty\tag{5.35}$$

Nesta solução, deve-se fazer D_k igual a zero, pois a função $Y_0(\beta_k r)$ não é definida na origem, e com a condição $R(a)=0$, tem-se que $J_0(\beta_k a)=0$, o que determina todos os auto-valores β_k . Com isto, a solução geral para $R(r)$ é:

$$R(r) = B_k J_0(\beta_k r) \quad , \text{ para } k=1,2,\dots,\infty \quad (5.36)$$

A solução para $Z(z)$ é uma solução oscilatória do tipo:

$$Z(z) = C_n \sin(\mu_n z) + D_n \cos(\mu_n z) \quad (5.37)$$

A primeira condição de contorno para $Z(z)$ resulta $C_n=0$, então:

$$Z(z) = D_n \cos(\mu_n z) \quad (5.38)$$

E com a segunda condição de contorno para $Z(z)$, obtém-se:

$$\mu_n = \frac{(2n-1)\pi}{2e} \quad , \text{ para } n=1,2,\dots,\infty \quad (5.39)$$

Feito isto, a solução geral da equação diferencial para $Z(z)$ é:

$$Z(z) = D_n \cos\left[\frac{(2n-1)\pi}{2e} z\right] \quad , \text{ para } n=1,2,\dots,\infty \quad (5.40)$$

Finalmente, a solução para a equação temporal é imediata e dada por:

$$\tau(t) = C_{n,k} e^{-\frac{k}{\rho c}(\mu_n^2 + \beta_k^2)t} \quad (5.41)$$

As soluções (5.36), (5.40) e (5.41) são as soluções separadas da função $\psi(r, z, t) = R(r)Z(z)\tau(t)$, logo a solução geral será:

$$\psi(r, z, t) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{k=1}^{\infty} A_{n,k} J_0(\beta_k r) \cos(\mu_n z) e^{-\frac{k}{\rho c}(\mu_n^2 + \beta_k^2)t} \quad (5.42)$$

onde $A_{n,k} = B_k D_n C_{n,k}$ e $\mu_n = \frac{(2n-1)\pi}{2e}$.

Da condição (5.19) juntamente com a solução (5.29), obtém-se:

$$\sum_{n=1}^{\infty} \sum_{k=1}^{\infty} A_{n,k} J_0(\beta_k r) \cos(\mu_n z) = - \sum_{m=1}^{\infty} a_m J_0(\lambda_m r) \sinh[\lambda_m(e-z)] \quad (5.43)$$

Empregando-se as propriedades de ortogonalidade das funções de Bessel^{67,68}, pode-se obter os valores das constantes $A_{n,k}$:

$$A_{n,k} = - \frac{2 a_k \beta_k \cosh(\beta_k e)}{e(\mu_n^2 + \beta_k^2)} \quad (5.44)$$

Substituindo (5.44) em (5.42), levando o resultado em (5.18) e depois em (5.14), juntamente com (5.29) e (5.30), obtém-se finalmente o perfil de transiente térmico procurado:

$$\begin{aligned} T(r, z, t) = & \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\frac{2}{k} \int_0^a q(r) r J_0(\beta_k r) dr}{\beta_k \cosh(\beta_k e) a^2 J_1^2(\beta_k a)} \times J_0(\beta_k r) \sinh[\beta_k(e-z)] - \\ & - \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{2 a_k \beta_k \cosh(\beta_k e)}{e(\mu_n^2 + \beta_k^2)} \times e^{-\frac{k}{\rho c}(\mu_n^2 + \beta_k^2)t} \cos(\mu_n z) J_0(\beta_k r) + T_0 \end{aligned} \quad (5.45)$$

Esta expressão representa o perfil do transiente térmico esperado para os alvos sólidos quando irradiados com feixes de prótons com alta corrente de feixe. As constantes de integração a_k e β_k são determinadas numericamente usando a condição inicial e as condições de contorno do problema. Os auto-valores μ_n já estão determinados por (5.39).

Para obter os perfis de difusão térmica no interior das pastilhas metálicas, foram empregados dois programas de manipulação numérica chamados *SciLab* (<http://www.scilab.org>) e *Octave* (<http://www.octave.org>) ambos de código aberto e rodando em plataforma GNU-LINUX. A tabela 5.3 trás os dados físicos usados para os cálculos⁶⁹.

Tabela 5.3 – Propriedades físicas dos materiais usados nas simulações.

Material	Calor Específicos ($J/kg \cdot ^\circ C$) $\times 10^3$	Densidade (kg/m^3) $\times 10^3$	Condutividade Térmica ($W/m \cdot ^\circ C$)
Zinco	0,39	7,00	121,00
Níquel	0,44	8,80	91,00
Tálio	0,13	11,85	390,00

A Figura 5.13 mostra o resultado encontrado para a simulação de irradiação do $^{124}\text{TeO}_2$ com prótons de 12 MeV de energia e 12,5 μA de corrente de feixe, o que corresponde a uma potência térmica de 150 W ou 1,88 MW/m^2 .

Figura 5.13. Transiente térmico em uma pastilha de $^{124}\text{TeO}_2$ irradiada com prótons de 12 MeV de energia e 12,5 μA de corrente de feixe na posição ($r = 0, z = 0,1$).

A Figura 5.14 mostra o resultado encontrado para a simulação de irradiação do ^{203}Tl com prótons de 28 MeV de energia e 190 μA de corrente de feixe, o que corresponde a uma potência térmica depositada sobre o alvo de 5320 W ou 66,5 MW/m^2 .

Figura 5.14. Transiente térmico em uma pastilha de ^{203}Tl irradiada com prótons de 28 MeV de energia e 190 μA de corrente de feixe na posição ($r = 0$, $z = 0,1$).

A Figura 5.15 mostra o resultado encontrado para a simulação de irradiação do ^{63}Cu com prótons de 24 MeV de energia e 500 μA de corrente de feixe, o que corresponde a uma potência térmica depositada sobre o alvo de 12.000 W ou 150 MW/m^2 .

Figura 5.15. Transiente térmico em uma pastilha de ^{63}Cu irradiada com prótons de 24 MeV de energia e 500 μA de corrente de feixe na posição ($r = 0$, $z = 0,1$).

A Figura 5.16 mostra o resultado encontrado para a simulação de irradiação do ^{64}Ni com prótons de 18 MeV de energia e 300 μA de corrente de feixe, o que corresponde a uma potência térmica depositada sobre o alvo de 5.400 W ou 67,5 MW/m^2 .

Figura 5.16. Transiente térmico em uma pastilha de ^{64}Ni irradiada com prótons de 18 MeV de energia e 300 μA de corrente de feixe na posição ($r = 0$, $z = 0,1$).

6. FUNÇÕES DE EXCITAÇÃO PARA REAÇÕES

A função de excitação para uma dada reação nuclear está relacionada à probabilidade de que um núcleo composto seja formado e então decomposto por uma determinada rota. Estas funções determinam a quantidade de radioisótopos que poderão ser produzidos em uma determinada irradiação em ciclotron, e também os níveis de contaminantes que podem estar presentes.

Com isto em mente, a obtenção das funções de excitação é de importância fundamental na determinação das melhores rotas para produções de radioisótopos de ciclotrons, principalmente para uso na medicina nuclear.

As características dos alvos e dos porta-alvos, as condições de irradiação, como tipo de partícula, energia cinética e corrente de feixe, tempo de irradiação e rendimento, são todos fatores determinados pelo preciso conhecimento das funções de excitação para as diversas reações nucleares de interesse prático.

Neste capítulo serão apresentadas as características fundamentais para o entendimento das reações nucleares de interesse, bem como os modelos numéricos e computacionais empregados na obtenção dos dados relevantes.

6.1.A BARREIRA DE POTENCIAL ELETROSTÁTICO

Do ponto de vista clássico, uma reação nuclear entre duas partículas eletricamente carregadas com cargas de mesmo sinal não pode ocorrer para os casos onde a energia cinética do centro de massa deste sistema é menor do que a energia potencial eletrostática entre as duas partículas. Esta energia potencial tem o nome de *barreira coulombiana* e é dada pela seguinte relação:

$$V_c(R) = \frac{Zz e^2}{R} \quad (6.1)$$

onde Z e z são os números atômicos das partículas, e é a carga elétrica elementar, e R a distância entre as partículas.

No caso da produção de radioisótopos usando ciclotrons^{70,7172}, isto implica que a partícula acelerada deve ter uma energia maior do que a energia de repulsão eletrostática entre ela e o núcleo do alvo. Entretanto, devido ao efeito de tunelamento quântico, estas reações ocorrem para valores de energia cinética muito abaixo da altura da barreira de Coulomb.

Os valores da barreira coulombiana para as quatro partículas mais comuns usadas em ciclotrons (*próton*, *déuteron*, ^3He e ^4He) são mostrados⁷³ no gráfico da figura 6.1 em função do número atômico (Z) de cada material.

Figura 6.1. Gráfico da barreira coulombiana em função do número atômico do núcleo alvo para as quatro partículas mais usadas em ciclotrons.

6.2. REAÇÕES NUCLEARES

Quando partículas de alta energia cinética atravessam a matéria, existe sempre alguma probabilidade de que ela interaja com algum núcleo ao longo de seu caminho. Em alguns casos, a partícula pode ser espalhada pelos núcleos, perdendo energia até parar completamente, em outros casos, se a energia cinética for suficientemente elevada, a partícula pode se combinar com um núcleo, formando um núcleo composto, que poderá ou não se decompor momentos depois, seguindo várias rotas possíveis, criando novos núcleos. A partícula incidente deve ter energia cinética suficiente para transpor não uma, mas duas barreiras de potencial. A primeira é a barreira coulombiana devido à repulsão eletrostática entre a partícula positivamente carregada e o núcleo também de carga elétrica positiva. A segunda barreira, depende se há excesso de energia após a reação ou se há conversão de energia em massa após a reação. No primeiro caso, a reação nuclear é exoenergética, havendo conversão de massa em energia, o que gera calor. No segundo caso, a reação é dita ser endoenergética, quando há a conversão de energia em massa. Estas conversões de massa em energia e vice-versa durante as reações nucleares são interpretadas por meio de uma quantidade chamada valor Q . Esta quantidade é simplesmente a diferença de massas entre os núcleos compostos e as partículas incidentes. Se ocorre uma reação nuclear, por alguns momentos o núcleo composto formado estará em um estado de energia altamente excitado devido a absorção das partículas incidentes que trazem junto tanto a energia cinética quanto a diferença de massa.

6.2.1. CONSERVAÇÃO DE ENERGIA

Em qualquer reação nuclear, a energia total envolvida deve ser conservada, o que significa que a energia total incluindo a massa de repouso das partículas interagentes deve ser igual a energia total incluindo a massa de repouso dos produtos. Qualquer incremento na energia cinética de uma partícula deve vir acompanhado de um igual decréscimo de massa. O valor Q de uma reação nuclear pode ser tanto positivo quanto negativo. Se a massa de repouso antes da reação é maior do que a massa de repouso após a reação, o valor Q desta reação é positivo, sendo que a diminuição em massa é convertido

em um ganho de energia cinética. O equivalente em massa de Q é dado por:

$$Q = 931,4 \times [(m_p + M_A) - (m_q + M_R)] \quad (\text{MeV}/c^2) \quad (6.2)$$

onde m_p é massa da partícula incidente; M_A é massa do núcleo alvo; m_q é a massa da partícula emitida; e M_R é a massa no núcleo resultante da reação nuclear.

No caso em que $Q < 0$ (reação endoenergética), uma quantidade de energia maior do que o valor de Q (em módulo) deve ser fornecida externamente para que a reação nuclear possa acontecer. O limiar de reação será a altura da barreira coulombiana somada a esta diferença de energia. Devido também à conservação do *momentum*, apenas uma fração da energia cinética estará disponível para compensar o déficit de massa. Se $Q > 0$ (reação exoenergética) o limiar de reação será apenas a altura da barreira coulombiana. Na realidade, devido ao efeito túnel previsto pela Mecânica Quântica, as reações nucleares começam a ocorrer quando as funções distribuição de energia começam a se sobrepor umas nas outras, desta forma, vão ocorrer para energias bem abaixo da barreira coulombiana.

6.2.2. SEÇÃO DE CHOQUE DE REAÇÕES NUCLEARES

Existem inúmeros modelos que tentam descrever uma reação nuclear particular. Casos gerais são de extrema complexidade, que em geral não são levados em conta. Dentre estes inúmeros modelos, existe o “Modelo das Esferas Tocantes”, que pode ser visualizado como duas esferas que caminham uma de encontro a outra. Se estas esferas se tocam, então haverá uma reação nuclear, e se elas não se tocam, não haverá uma reação. Nesta visualização, a probabilidade de reação deve ser proporcional à área da seção transversal das duas esferas. A seção de choque total da reação será dada pela seguinte equação:

$$\sigma_R = \pi r_0^2 (A_P^{1/3} + A_A^{1/3})^2 \quad (6.3)$$

onde $r_0 \sim 1,6 \text{ fm}$ ($1 \text{ fm} = 10^{-15} \text{ m}$), A_P e A_A são as massas atômicas da partícula incidente e

do alvo, respectivamente.

Uma reação nuclear só ocorrerá por efeito de tunelamento quântico se o mínimo de energia é menor do que o necessário para transpor a barreira coulombiana e um valor negativo de Q para a reação. Partículas com energia abaixo desta barreira tem uma probabilidade muito pequena de provocar uma reação nuclear. A energia necessária para induzir uma reação aumenta proporcionalmente aos valores de Z do material do alvo. Para materiais com Z muito baixo, é possível usar aceleradores de baixa energia, mas para materiais de Z alto, é necessário aumentar a energia da partícula incidente, como poder ser visto do gráfico da figura 6.1.

6.2.3. CÁLCULO DO RENDIMENTO

Diretamente ligado ao rendimento de produção de um determinado radioisótopo, está a função de excitação que relaciona a seção de choque e a energia para a reação nuclear desejada. Além disso, a energia das partículas incidentes, a espessura do material do alvo em núcleos/cm², o qual determinará a energia da partícula emitida, e a corrente de feixe (número de partículas incidentes por unidade de tempo) são também fatores preponderantes.

Nos casos mais simples, onde se assume um valor de função de excitação constante^{74,75,76} para um intervalo razoável de energia, a taxa de produção é dada pela relação:

$$R = n_A I_A \sigma(E) \quad (6.4)$$

onde R é a taxa de formação de núcleos por unidade de tempo; n_A é a densidade de núcleos do alvo (núcleos/cm²); I_A é a corrente de feixe incidente sobre o alvo; $\sigma(E)$ é a probabilidade de interação (ou seção de choque da reação); e E é a energia cinética da partícula incidente.

A seção de choque de qualquer reação nuclear é sempre uma função da energia, como já mostrado anteriormente neste trabalho. Se uma expressão mais exata for empregada nos cálculos de taxa de reação, a expressão (6.4) se torna:

$$R = n_A I_A \int_{E_s}^{E_0} \frac{\sigma(E)}{dE/dx} dE \quad (6.5)$$

Quando a partícula atravessa o material alvo, ela perde energia cinética devido às interações com os elétrons do alvo. Isto é representado pelo termo dE/dx na equação acima. Este termo recebe o nome de poder de freamento (*stopping power*) do meio.

Fazendo uma análise dimensional em (6.4), pode-se verificar que o termo n_A pode ser escrito da seguinte maneira:

$$n_A = \frac{\rho x}{A_A} N_0 \quad (6.6)$$

onde n_A é a densidade de núcleos (núcleos/cm²); A_A é o peso atômico do material alvo (g); ρ é a densidade do material (g/cm³); N_0 é o número de Avogadro; e x é a distância percorrida pela partícula dentro do material até perder totalmente sua energia cinética.

Se o material alvo é composto, isto é, não é um material puro ou então não é feito de um isótopo enriquecido, então estas expressões ficam bem mais complexas. Estes casos não serão tratados aqui por uma questão de simplicidade, pois um dos objetivos deste trabalho é mostrar que, para casos simples e particulares, as funções de excitação podem ser calculadas assumindo umas poucas aproximações e simplificações, sem contudo deixar o rigor físico ou matemático de lado.

As equações acima conduzem a um dos fatores mais básicos da produção de radioisótopos em ciclotrons: nem sempre é possível eliminar todas as impurezas, mesmo com o maior enriquecimento isotópico possível e com a seleção mais precisa da energia do feixe. Como exemplo, a figura 6.2 mostra as funções de excitação para o ¹²⁴Te

bombardeado com prótons de energia até 35 MeV.

Se o interesse está voltado à produção de ^{123}I , não há como eliminar totalmente o ^{124}I desta produção, porque o intervalo de energia para produção de ^{124}I tem uma porção sobreposta ao intervalo de energia de produção do ^{123}I . Tudo o que se pode fazer em uma situação como esta, é escolher um valor de energia para a qual a produção de ^{124}I seja mínima. Neste caso em particular, como mostra a figura 6.2, escolhendo uma energia acima de 20 MeV resultará em uma produção mínima desta impureza.

Por outro lado, se o interesse estiver voltado à produção de ^{124}I , então baixas energias devem ser escolhidas, da ordem de 13 – 14 MeV.

Figura 6.2. Seções de choque de reação nuclear do ^{124}Te para produção de ^{123}I e ^{124}I .

6.2.4. FATOR DE SATURAÇÃO

Tão logo inicia a irradiação do alvo e o radioisótopo começa a ser produzido, este também começa a decair, de acordo com sua constante de decaimento radioativo, a qual mede a probabilidade de um dado radioisótopo decair dentro de um certo intervalo de tempo. Com isto, a taxa global de produção do radioisótopo pode ser escrita da seguinte forma:

$$-\frac{dn}{dt} = n_A I_A \int_{E_i}^{E_0} \frac{\sigma(E)}{dE/dx} dE - \lambda N \quad (6.7)$$

onde λ é a constante de decaimento do isótopo produzido; e N é o número destes isótopos presentes.

Como já mencionado, o termo no denominador da integral é o poder de freamento do material alvo. Para um particular valor de energia, este termo é representado como segue:

$$S_T(E) = \frac{dE}{dx} \quad (\text{MeV/cm}^2 \cdot \text{g}) \quad (6.8)$$

Com esta expressão, a perda de energia dE da partícula ao atravessar o elemento de comprimento dx , será dada por:

$$dE = S_T(E) \rho dx \quad (6.9)$$

onde ρ é a densidade do material (g/cm^3), e a espessura do elemento de comprimento ρdx (g/cm^2) pode ser expresso em termos da energia da seguinte forma:

$$\rho dx = \frac{dE}{S_T(E)} \quad (6.10)$$

Integrando (6.10), e assumindo que a corrente de feixe seja sempre constante durante todo o tempo de irradiação, pode-se determinar qual será o rendimento de uma dada reação nuclear:

$$Y_{EOB} = \frac{N_A I_A}{A_A} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_i}^{E_0} \sigma_T(E) \frac{dE}{S_T(E)} \quad (6.11)$$

Nesta expressão, o termo $(1 - e^{-\lambda t})$ é o Fator de Saturação, pois mostra a competição entre a produção de núcleos radioativos e o consequente decaimento dos

mesmos. Para tempos infinitamente longos de irradiação, este fator tende a unidade, então tem-se o que se chama de rendimento de saturação. Esta quantidade é mostrada como função da energia na figura 6.3 para a reação nuclear $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$.

Figura 6.3. Rendimento de saturação para a reação $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$.

6.3. CARACTERÍSTICAS DOS RADIOISÓTOPOS ESTUDADOS

Antes de apresentar os resultados computacionais desenvolvidos neste trabalho para obtenção das curvas de seção de choque de reação nuclear em função da energia cinética dos prótons incidentes, serão apresentadas antes as características físicas mais importantes dos elementos que foram foco destes estudos. Meia-vida, modos de decaimento, energia das partículas emitidas, e as funções de excitação determinadas por outros grupos de pesquisa, serão os dados apresentados, e no final do capítulo apresentamos nossos resultados em comparação com dados encontrados na literatura.

6.3.1. GÁLIO-67 ($T_{1/2} = 3,26 \text{ d}$)

6.3.1.1 USO

No corpo humano, o gálio apresenta um comportamento semelhante ao

ferro. É comumente empregado na forma de citrato de gálio e tem sido um agente importante na detecção e localização de certas neoplasias e lesões inflamatórias.

6.3.1.2 DECAIMENTO

O ^{67}Ga decai para o ^{67}Zn por captura de elétrons. As emissões incluem Raios- γ de 93,3 keV (37,0%), 184,6 keV (20,4%) e 300,2 keV (16,6%).

6.3.1.3 REAÇÕES NUCLEARES

O ^{67}Ga é geralmente produzido usando alvos enriquecidos⁷⁷ de ^{68}Zn , através da reação nuclear $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$.

A função de excitação para a reação $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$ é mostrada na figura 6.4.

Figura 6.4. Função de excitação para a reação nuclear $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$.

6.3.1.4. PREPARAÇÃO DO ALVO

O alvo para produção de ^{67}Ga é composto de ^{68}Zn que pode ser tanto prensado quanto eletrodepositado sobre uma placa de cobre. A eletrodeposição usando corrente contínua pode ser muito complicado; a solução eletrolítica é ZnCl_2 , com pH entre

5 e 6, e uma pequena quantidade de hidrato de hidrazina (NH_2NH_2) é adicionada como despolarizador⁷⁸. O material eletrodepositado deve apresentar uma coloração metálica brilhante, uniformemente distribuída sem formação de dendritos e deve estar bem aderida à superfície da placa de cobre.

O alvo de pó de zinco é preparado por meio da prensagem do pó metálico sobre a placa de cobre, de forma uniaxial com uma pressão de 523 Mpa, em vácuo, por meio de uma punção de face chata feita de aço ferramenta. O pó metálico pensado não deve ultrapassar 95% de sua máxima densidade teórica, quando então pode ser recozido/sinterizado em forno a 400° C por meia hora.

6.3.2. COBRE-64 ($T_{1/2} = 12,7 \text{ h}$)

6.3.2.1 USO

Existe uma literatura extensiva sobre o uso do ^{64}Cu na medicina nuclear⁷⁹. ^{64}Cu tem se tornado de grande interesse nos últimos anos devido a sua meia-vida curta, ao seu grande potencial para uso em tomografia PET, por ser um emissor de pósitrons, e sua versatilidade para ser incorporado a moléculas complexas através das técnicas já desenvolvidas para o ^{67}Cu . Os processos químicos envolvidos na fabricação destas moléculas marcadas com ^{64}Cu continuam seus desenvolvimentos porque as formas originais não foram capazes de mostrar resultados *in vivo*. Além disso, há interesse em usar o ^{64}Cu como um potencial radioisótopo terapêutico devido a seus dois decaimentos beta (β^+ e β^-). Uma extensa revisão sobre a produção e uso do ^{64}Cu , pode ser encontrada em⁸⁰.

6.3.2.2. DECAIMENTO

O ^{64}Cu é o único radioisótopo que decai por captura eletrônica (44%), emissão de pósitrons (17%) e emissão β^- (39%). Então, o ^{64}Cu pode ser usado em tomografia PET, além de apresentar um bom potencial terapêutico devido às partículas β^+ e β^- .

6.3.2.3. REAÇÕES NUCLEARES

O ^{64}Cu pode ser produzido por diversas rotas: $^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$, $^{68}\text{Zn}(p,\alpha n)^{64}\text{Cu}$ ou $^{66}\text{Zn}(d,\alpha)^{64}\text{Cu}$, sendo que a primeira reação é a que tem sido mais amplamente usada. A reação direta (p,n) com ^{64}Ni altamente enriquecido conduz a grandes quantidades de ^{64}Cu , livre de carregadores^{81,82,83}. Alvos para correntes de feixe relativamente altas foram desenvolvidos pela eletrodeposição do material enriquecido sobre uma placa de ouro refrigerada a água⁸⁴.

A função de excitação para a reação $^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$ é mostrada na figura 6.5.

6.3.3. TÁLIO-201 ($T_{1/2} = 73,06 \text{ h}$)

6.3.3.1. USO

O teste de esforço com ^{201}Tl se tornou um dos mais amplamente utilizados testes na medicina nuclear diagnóstica nos últimos anos, e com a crise mundial do gerador de ^{99}Tc , a procura pelo ^{201}Tl tem crescido exponencialmente desde o final de 2008 até meados de 2009.

Figura 6.5. Função de excitação para a reação nuclear $^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$.

Imagens tomográficas feitas com ^{201}Tl tem facilitado muito as características

funcionais do miocárdio, o que tem permitido uma ampla avaliação dos danos pós traumas cardíacos, como infartos ou até mesmo doenças cardíacas crônicas⁸⁵.

6.3.3.2. DECAIMENTO

O ^{201}Tl decai por captura eletrônica com a emissão de raios- γ de 167 e 135 keV de energia, respectivamente, energias ideais para uso em câmara gama^{86,87}.

6.3.3.3. REAÇÕES NUCLEARES

A rota mais comumente usada para produzir o ^{201}Tl tem sido a reação $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb} \rightarrow ^{201}\text{Tl}$, usando ^{203}Tl enriquecido.

A função de excitação para a reação $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$ está na figura 6.6.

Figura 6.6. Função de excitação para a reação nuclear $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$.

6.4. SEÇÃO DE CHOQUE E PROBABILIDADE DE REAÇÃO

A tarefa de se obter tanto uma expressão analítica para as seções de choque de reações nucleares, tanto uma expressão que descreva a facilidade (ou dificuldade) com que um dado íon penetre um alvo e deposite nele toda (ou parte) de sua energia cinética,

produzindo com isto uma determinada reação nuclear, não é nada trivial, muito pelo contrário. Na maior parte dos casos de interesse prático, apenas soluções muito limitadas e aproximadas podem ser encontradas.

Os trabalhos desenvolvidos por J. P. Biersack and L. Haggmark⁸⁸, permitem a obtenção de resultados mais precisos e confiáveis pela aplicação de dois sofisticados algoritmos computacionais que envolvem aspectos tanto quânticos quanto estatísticos da natureza das colisões e das reações nucleares. Tratam-se do SRIM (*Stopping and Range of Ions in Matter*) e do TRIM (*Transport and Range of Ions in Matter*)^a, que são compostos por um conjunto de rotinas e subrotinas de computador que calculam o alcance e o poder de freamento de íons com massa até $2\text{ GeV}/c^2$ no interior da matéria, usando a dinâmica quântica para analisar colisões entre átomos e íons, assumindo que os átomos sejam os alvos e os íons as partículas incidentes. Os cálculos são feitos dividindo o processo de interação em etapas, sendo que à cada uma delas é associado um salto de energia do íon entre duas colisões sucessivas. Em seguida, é calculada a média dos resultados obtidos dentro do intervalo de interação.

Durante todo o processo de colisão, átomos e íons ficam sujeitos à interação coulombiana e às interações entre as camadas eletrônicas que acabam se superpondo. Os íons apresentam interações de longo alcance, criando excitações eletrônicas e formação de plasma no interior dos alvos. Estes fenômenos são levados em conta pela inclusão de dados que descrevem a estrutura eletrônica e interatômica dos alvos, dados estes que são encontrados em tabelas de valores nominais e que são fornecidos juntamente com os pacotes dos algoritmos.

A carga elétrica dos íons no interior dos alvos é descrita pelo conceito de carga efetiva, o qual inclui a dependência com a velocidade e os espalhamentos de longo alcance devido ao mar de elétrons dos átomos do alvo.

Neste trabalho, empregou-se o algoritmo SRIM para os cálculos numéricos que levaram à obtenção das curvas de seção de choque de reação nuclear para os casos

a Estes algoritmos podem ser baixados sem custo de www.srim.org

estudados, e os resultados são apresentados a seguir.

6.4.2.SOLUÇÕES NUMÉRICAS

Com base nos resultados fornecidos pelo algoritmo SRIM, foram desenvolvidas subrotinas de computador com a finalidade de construir as curvas das funções de excitação para os casos analisados neste capítulo. Foram usados dois programas de manipulação numérica, SciLab^b versão 5.1.1 e OCTAVE^c versão 3.0.1, ambos rodando sobre plataforma GNU-LINUX. Para todos os casos analisados neste trabalho, procurou-se obter os valores máximos das funções de excitação em função da energia. Os resultados obtidos são mostrados nas figuras 6.9 a 6.11 onde podem ser vistas as seções de choque de reação nuclear do ^{68}Zn , do ^{64}Ni e do ^{201}Tl , respectivamente.

Figura 6.9 – Seção de choque de excitação do ^{68}Zn para a reação $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$.

^b Pode ser baixado sem custos de www.scilab.org

^c Pode ser baixado sem custos de www.octave.org

Figura 6.10 – Seção de choque de excitação do ^{64}Ni para a reação $^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$.

Figura 6.11 – Seção de choque de excitação do ^{203}Tl para a reação $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$.

7. CONCLUSÕES

Finalizando este trabalho, neste capítulo serão feitas algumas considerações gerais relativas aos modelos desenvolvidos e aos resultados obtidos a partir destes modelos.

7.1. ANÁLISES TÉRMICAS PARA ALVOS METÁLICOS IRRADIADOS

A geometria empregada no desenvolvimento do modelo de transferência de calor para alvos metálicos irradiados em ciclotrons não é similar à geometria dos alvos empregados na realidade. Esta escolha foi feita para aumentar o grau de simetria do problema proposto, o que simplifica muito as equações diferenciais para transferência de calor. De fato, caso fosse empregada uma geometria mais próxima daquela encontrada na realidade, não teria sido possível obter soluções analíticas, como as apresentadas neste trabalho.

Contudo, as soluções encontradas para o modelo proposto se mostraram bastante razoáveis, fornecendo resultados numéricos satisfatórios para transferência de calor em alvos realistas, principalmente na região de estado estacionário. Na região do transiente térmico, parte original do presente trabalho, não há resultados com os quais se possa fazer uma comparação.

O modelo proposto visa servir tão somente como subsídio para futuros desenvolvimentos de alvos metálicos para operarem sob altas correntes de feixe.

7.2. SEÇÃO DE CHOQUE E PROBABILIDADE DE REAÇÃO

Com relação aos resultados encontrados para as curvas de seção de choque para as reações nucleares analisadas, pode-se afirmar que são satisfatórios, tendo em vista os métodos empregados para sua obtenção.

A física nuclear como um todo e em particular a física das reações nucleares são baseadas em modelos matemáticos construídos a partir de resultados experimentais, ou seja, são modelos semi-empíricos. Não há na literatura correspondente nenhum tipo de modelo matemático que explique de forma abrangente as reações nucleares produzidas pelo bombardeamento de alvos por íons acelerados.

Por este motivo, neste trabalho foram empregados algoritmos computacionais que levam em conta tanto os resultados experimentais já conhecidos e bem sedimentados, quanto fundamentos teóricos da Mecânica Quântica e da Estatística.

Em todos os casos analisados os alvos são considerados materiais monoisotópicos, e o feixe de partículas aceleradas é considerado monoenergético. Com estas idealizações, as curvas de seção de choque obtidas apresentam amplitudes muito maiores quando comparadas com as amplitudes obtidas em laboratório, embora seu perfil seja compatível com os mesmos resultados.

Além disso obteve-se estas aproximações razoáveis, utilizando programas de computador de livre acesso, portanto, sem custo.

REFERÊNCIAS

- 1 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Directory of Cyclotrons Used for Radionuclide Production in Member States, IAEA-DCRP/2006, IAEA, Vienna (2006).
- 2 CASSEN, B., et al., Instrumentation for ^{131}I use in medical studies, *Nucleonics* 9 (1951) 46.
- 3 ANGER, H.O., Scintillation camera, *Rev. Sci. Instrum.* 29 (1958) 27.
- 4 TUCKER, W.D., GREENE, M.W., WEISS, A.J., MURRENHOFF, A.P., *Trans. Am. Nucl. Soc.* 1 (1958) 160.
- 5 LEBOWITZ, E., et al., Thallium-201 for medical use, *J. Nucl. Med.* 16 (1975) 151–155.
- 6 McCARTHY, D.W., et al., Efficient production of high specific activity ^{64}Cu using a biomedical cyclotron, *J. Nucl. Med. Biol.* 24 (1997) 35–43.
- 7 LEWIS, M.R., et al., In vivo evaluation of pretargeted ^{64}Cu for tumor imaging and therapy, *J. Nucl. Med.* 44 (2003) 1284–1292.
- 8 HARBERT, J., DA ROCHE, A.F.G., Textbook of Nuclear Medicine, Vol. 1: Basic Science, 2nd edn, Lea and Febiger, Philadelphia, PA (1984).
- 9 SAHA, G.B., Fundamentals of Nuclear Pharmacy, Springer-Verlag, Berlin (1979).
- 10 ECKELMAN, W.C., The status of radiopharmaceutical research, *Int. J. Radiat. Appl. Instrum. B* 18 (1991) iii–vi.
- 11 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Radiotracer Applications in Industry — A Guidebook, Technical Reports Series No. 423, IAEA, Vienna (2004).

- 12 RUTHERFORD, E., Collisions of alpha particles with light atoms, IV. An anomalous effect in nitrogen, London, Edinburgh and Dublin Phil. Mag. and J. Sci. 37 (1919) 581.
- 13 LAWRENCE, E.O., EDLEFSEN, N.E., On the production of high speed protons, Science 72 (1930) 376–377.
- 14 LAWRENCE, E.O., LIVINGSTON, M.S., The production of high speed protons without the use of high voltages, Phys. Rev. 38 (1931) 834.
- 15 TER-POGOSSIAN, M.M., WAGNER, H.N., Jr., A new look at the cyclotron for making short-lived isotopes, Nucleonics 24 (1966) 50.
- 16 WOLF, A.P., Cyclotrons for biomedical radioisotope production, Medical Radionuclide Imaging (Proc. IAEA Symp. Los Angeles, 1977), Vol. 1, IAEA, Vienna (1978) 343–353.
- 17 WOLF, A.P., Cyclotrons, radionuclides, precursors, and demands for routine versus research compounds, Ann. Neurol. 15 (Suppl.) (1984) S19–S24.
- 18 WOLF, A.P., JONES, W.B., Cyclotrons for biomedical radioisotope production, Radiochim. Acta 34 (1983) 1–7.
- 19 RUTH, T.J., PATE, B.D., ROBERTSON, R., PORTER, J.K., Radionuclide production for the biosciences, Nucl. Med. Biol. 16 (1989) 323–336.
- 20 LIVINGOOD, J.J., Principles of Cyclic Particle Accelerators, Van Nostrand, Princeton, NJ, and New York (1961).
- 21 SCHARF, W., Biomedical Particle Accelerators, American Institute of Physics Press, New York (1994).
- 22 HEILBRON, J.L., SEIDEL, R.W., WHEATON, B.R., Lawrence and His Laboratory, A Historian's View of the Lawrence Years, LBL Newsmagazine, Lawrence Berkeley Natl Lab., Berkeley, CA (1981) .

- 23 DUGGAN, J.L., MORGAN, I.L., Applications of accelerators in research and industry, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 56 (1990) 57.
- 24 SHEFER, R.E., KLINKOWSTEIN, R.E., HUGHEY, B.J., WELCH, M.J., “Production of PET radionuclides with a high current electrostatic accelerator”, Targetry and Target Chemistry (Proc. 4th Int. Workshop Villigen, 1992), TRIUMF, Vancouver (1992).
- 25 DECONNINCK, G., Introduction to Radioanalytical Physics, Nuclear Methods Monographs No. 1, Elsevier, Amsterdam and New York (1978).
- 26 EVANS, R.D., The Atomic Nucleus, McGraw-Hill, New York (1955).
- 27 FRIEDLANDER, G., KENNEDY, J.W., MACIAS, E.S., MILLER, J.M., Nuclear and Radiochemistry, 3rd edn, Wiley, New York (1981).
- 28 ZIEGLER, J.F., SRIM — The Stopping and Range of Ions in Matter, <http://www.srim.org/>
- 29 GANDARIAS-CRUZ, D., OKAMOTO, K., Status on the Compilation of Nuclear Data for Medical Radioisotopes Produced by Accelerators, Rep. INDC (NDS)-209/GZ, IAEA, Vienna (1988).
- 30 EVANS, R.D., The Atomic Nucleus, McGraw-Hill, New York (1955).
- 31 DECONNINCK, G., Introduction to Radioanalytical Physics, Nuclear Methods Monographs No. 1, Elsevier, Amsterdam and New York (1978).
- 32 SCHLYER, D.J., PLASCJAK, P.S., Small angle multiple scattering of charged particles in cyclotron target foils: A comparison of experiment with simple theory, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 56/57 (1991) 464–468.

- 33 WESTIN, J.L., Mechanical Safety Subcommittee Guideline for Design of Thin Windows for Vacuum Vessels, Rep. TM-1380, FermiLab, Batavia, IL (1991).
- 34 JANNI, J., Stopping Power and Ranges, Rep. AFWL-TR-65-150, Air Force Weapons Lab., Kirtland AFB, NM (1965).
- 35 WILLIAMSON, C.F., BOUJOT, J.P., PICARD, J., Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements for Charged Particles of Energy 0.5–500 MeV, Rep. CAE-R 3042, Centre d'études nucléaires de Saclay, Gif-sur-Yvette (1966).
- 36 BERGER, M.J., et al., Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles, ICRU Rep. 49, International Commission on Radiation Units and Measurements Bethesda, MD (1993).
- 37 ZIEGLER, J.F., SRIM — The Stopping and Range of Ions in Matter.
- 38 HESELIUS, S.J., SCHLYER, D.J., WOLF, A.P., A diagnostic study of proton beam irradiated water targets, Appl. Radiat. Isot., Int. J. Radiat. Appl. Instrum. A 40 (1989) 663–669.
- 39 WIELAND, B.W., SCHLYER, D.J., WOLF, A.P., Charged particle penetration in gas targets designed for accelerator production of radionuclides used in nuclear medicine, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 35 (1984) 387–396.
- 40 CHRISTMAN, D.R., FINN, R.D., KARLSTROM, K.I., WOLF, A.P., Production of carrier-free $H^{11}CN$ for medical use and radiopharmaceutical synthesis IX, J. Nucl. Med. 14 (1973) 864.
- 41 FINN, R.D., CHRISTMAN, D.R., ACHE, H.J., WOLF, A.P., The preparation of cyanide- ^{11}C for use in synthesis of radiopharmaceuticals, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 22 (1971) 435.

- 42 BIDA, G., et al., An economical target for nitrogen-13 production by proton bombardment of a slurry of ^{13}C powder in ^{16}O water, *J. Labelled Compd. Radiopharm.* 23 (1986) 1217.
- 43 FERRIERI, R.A., SCHLYER, D.J., WIELAND, B.W., WOLF, A.P., On-line production of ^{13}N -nitrogen gas from a solid enriched ^{13}C -target, and its application to ^{13}N -ammonia synthesis using microwave radiation, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 34 (1983) 897–900.
- 44 FOWLER, J.S., WOLF, A.P., The Synthesis of Carbon-11, Fluorine-18, and Nitrogen-13 Labeled Radiotracers for Biomedical Applications, Nuclear Science Series Rep. NAS-NS-3201, National Technical Information Service, Springfield, VA (1982).
- 45 HESELIUS, S.-J., LINDBLOM, P., SOLIN, O., Optical studies of the influence of an intense ion beam on high pressure gas targets, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 33 (1982) 653–659.
- 46 HOLMAN, J.P., Heat Transfer, 9th edn, McGraw-Hill, New York (2002).
- 47 BISHOP, A., SATYAMURTHY, N., BIDA, G., PHELPS, M., BARRIO, J.R., Metals suitable for fluorine gas target bodies: First use of aluminum for the production of ^{18}F , *Nucl. Med. Biol.* 23 (1996) 181–188.
- 48 SCHLYER, D.J., Production of short-lived radiopharmaceuticals for PET, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 24/25 (1987) 925–927.
- 49 RUTH, T.J., et al., A proof of principle for targetry to produce ultrahigh quantities of ^{18}F -fluoride, *Appl. Radiat. Isot.* 55 (2001) 457–461.
- 50 ROBERTS, A.D., OAKES, T.R., NICKLES, R.J., Development of an improved target for ^{18}F production, *Appl. Radiat. Isot.* 46 (1995) 87.
- 51 BISHOP, A., SATYAMURTHY, N., BIDA, G., PHELPS, M., BARRIO, J.R., Metals suitable for fluorine gas target bodies: First use of aluminum for the production of ^{18}F , *Nucl. Med. Biol.* 23 (1996) 181–188.

Nucl. Med. Biol. 23 (1996) 181–188.

52 NICKLES, R.J., HICHLA, R.D., DAUBE, M.E., HUTCHINS, G.D., CONGDON, D.D., An ^{18}O -target for the high yield production of ^{18}F -fluoride, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 34 (1983) 625–629.

53 SCHMITZ, F., et al., “Production of multi Curie ^{18}F fluoride using a niobium target chamber at small PET cyclotrons”, in Targetry and Target Chemistry (Proc. 9th Int. Workshop Turku, 2002), TRIUMF, Vancouver .

54 SALVADORI, P.A., et al., Preliminary results from an enriched water target for the production of ^{18}F fluoride, Acta Radiol. Suppl. 376 (1991) 60.

55 STEEL, C.J., DOWSETT, K., PIKE, V.W., CLARK, J.C., “Ten years experience with a heavily used target for the production of ^{18}F fluoride by proton bombardment of ^{18}O ”, Targetry and Target Chemistry (Proc. 7th Int. Workshop Heidelberg, 1997), TRIUMF, Vancouver.

56 Targetry and Target Chemistry, Proceedings Publications, TRIUMF, Vancouver, <http://trshare.triumf.ca/~buckley/wttc/proceedings.html> .

57 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Standardized High Current Solid Targets for Cyclotron Production of Diagnostic and Therapeutic Radionuclides, Technical Reports Series No. 432, IAEA, Vienna (2004) .

58 CANNING, W., The Canning Handbook on Electroplating, E.&F.N. Spon Ltd, London (1977).

59 CHARLOT, G., Les réactions chimiques en solution aqueuse, 7th edn, Masson, Paris (1983).

- 60 DURNEY, L.J., *Electroplating Engineering Handbook*, 4th edn, Chapman & Hall, London (1996).
- 61 LAITINEN, H.A., *Chemical Analysis*, MacGraw-Hill, New York (1960).
- 62 F. M. Nortier, N. R. Stevenson and W. Z. Gelbart, “*Investigation of the thermal performance of solid targets for radioisotope production*”, *Nuclear Instruments and methods in Physics Research A*, 355 (1995) 236-241.
- 63 W. L. Talbert, D. M. Drake, H.-H. Hsu and M. T. Wilson, “*Design aspects of high-power targets*”, *Nuclear Instruments and methods in Physics Research A*, 521 (2004) 136-142.
- 64 R. A. Pavan, W. Z. Gelbart and S. K. Zeisler, “*Thermal modeling of high-current solid targets*”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 257(1) (2003) 203-206.
- 65 J. J. Čonor, Ž. Stevanović, M. Rajčević and D. Košutić, “*Modeling of thermal properties of a TeO_2 target for radiodine production*”, *Nuclear Instruments and methods in Physics Research A*, 521 (2004) 161-170.
- 66 "Conduction Heat Transfer", Vedat S. Arpaci, Addison-Wesley Publishing Company, ISBN 0-201-00359-7.
- 67 "Mathematical Methods for Physics", George B. Arfken and Hans J. Weber, Academic Press, Fourth Edition, 1995 – ISBN 0-12-059816-7.
- 68 "Física Matemática", Eugene Butkov, Guanabara Dois, 1978 – ISBN 85-7030-008-5.
- 69 *Handbook of Materials Science*, Vol. I – General Properties, Charles T. Lynch, CRC Press Inc., Boca Raton, Florida, 1988.

- 70 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Radiotracer Applications in Industry — A Guidebook, Technical Reports Series No. 423, IAEA, Vienna (2004).
- 71 TER-PERGOSSIAN, M.M., Cyclotron produced short-lived radioactive isotopes, Am. J. Roentgenol. Radium Ther. Nucl. Med. 96 (1966) 737–743.
- 72 TER-PERGOSSIAN, M.M., WAGNER H.N., Jr., A new look at the cyclotron for making short-lived isotopes, Semin. Nucl. Med. 28 (1998) 202–212 .
- 73 EVANS, R.D., The Atomic Nucleus, McGraw-Hill, New York (1955).
- 74 CLEM, R.G., LAMBRECHT, R.M., Enriched ^{124}Te targets for production of ^{123}I and ^{124}I , Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 303 (1991) 115–118.
- 75 QAIM, S.M., Target development for medical radioisotope production at a cyclotron, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 282 (1989) 289–295.
- 76 JACOBSON, M.S., HUNG, J.C., MAYS, T.L., MULLAN, B.P., The planning and design of a new PET radiochemistry facility, Mol. Imag. Biol. 4 (2002) 119–127.
- 77 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Charged Particle Cross-section Database for Medical Radioisotope Production: Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions, IAEA-TECDOC-1211, IAEA, Vienna (2001).
- 78 VAN DEN WINKEL, P., et al., Vrije Universiteit Brussel, Brussels, personal communication, 1995.
- 79 BLOWER, P.J., LEWIS, J.S., ZWEIT, J., Copper radionuclides and radiopharmaceuticals in nuclear medicine, Nucl. Med. Biol. 23 (1996) 957–980.
- 80 SMITH, S.V., Molecular imaging with copper-64, J. Inorg. Biochem. 98 (2004) 1874–1901.

- 81 SZELECSÉNYI, F., BLESSING, G., QAIM, S.M., Excitation functions of proton induced nuclear reaction on enriched Ni-61 and Ni-64: Possibility of production of no-carrier-added Cu-61 and Cu-64 at a small cyclotron, *Appl. Radiat. Isot.* 44 (1993) 575–580.
- 82 McCARTHY, D.W., et al., Efficient production of high specific activity ^{64}Cu using a biomedical cyclotron, *Nucl. Med. Biol.* 24 (1997) 35–43.
- 83 HOU, X., JACOBSON, U., JORGENSEN, J.C., Separation of no-carrier-added ^{64}Cu from a proton irradiated ^{64}Ni enriched target, *Appl. Radiat. Isot.* 57 (2002) 773–777.
- 84 OBATA, A., et al., Production of therapeutic quantities of ^{64}Cu using a 12 MeV cyclotron, *Nucl. Med. Biol.* 30 (2003) 535–539.
- 85 WEINER, R.E., THAKUR, M.L., Metallic radionuclides: Applications in diagnostic and therapeutic nuclear medicine, *Radiochim. Acta* 70/71 (1995) 273–287.
- 91 BELGRAVE, E., LEBOWITZ, E., Development of ^{201}Tl for medical use, *J. Nucl. Med.* 13 (1972) 781.
- 86 LEBOWITZ, E., et al., ^{201}Tl for medical use, *J. Nucl. Med.* 14 (1973) 421–422.
- 87 LEBOWITZ, E., et al., Thallium-201 for medical use, *J. Nucl. Med.* 16 (1975) 151–155.
- 88 J. P. Biersack and L. Haggmark, *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 174, 257, 1980